

# エピタキシャル -Ta/CoFeB構造におけるスピントール効果に関する研究

著者	蒲生 寛武
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	11301甲第19276号
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/00130505">http://hdl.handle.net/10097/00130505</a>

令和元年度 博士学位論文

エピタキシャル  $\alpha$ -Ta/CoFeB 構造における  
スピンホール効果に関する研究

東北大学大学院 工学研究科

知能デバイス材料学専攻 博士課程後期 3年

B7TD5302 蒲生 寛武

指導教員 新田 淳作 教授



指 導 教 員	新 田 淳 作 教 授
研究指導教員	好 田 誠 准教授
	<p>○ 新 田 淳 作 教 授</p> <p><u>1 高 梨 弘 毅 教 授</u>   <u>2 杉 本 諭 教 授</u></p> <p><u>3 好 田 誠 准教授</u>   <u>4 教 授</u></p> <p><u>5 教 授</u>   <u>6 教 授</u></p>

**ABSTRACT :** Spintronics is a research field to investigate the spin dependent phenomena for establishing new functional device. Spin-orbit interaction is an important concept in spintronics, because this effect enables us to generate the effective magnetic field acting on the electron with finite wave vector. As one of the research topic of making use of spin-orbit interaction, manipulation of the magnetization direction without using external magnetic field is the important research objective in spintronics research field. Spin Hall effect is one of the key concept to achieve the current induced magnetization switching. Since spin Hall effect generates damping-like current induced effective magnetic field, which is necessary to induce the magnetization switching, to find the material with large spin Hall angle is important. Historically, such attempts as to find the material with large spin Hall angle has done by alloying, oxidation treatment of the materials, and polycrystalline or amorphous structure thin film was used for such experiments. However, in this doctoral thesis, I focused on epitaxial material to obtain large spin Hall angle. Recently, interface contribution of the spin Hall effect is intensively studied, and such interface contribution strongly modulates the spin Hall angle. Since the epitaxial material has the larger mean free path than that in the polycrystalline or amorphous material, interface phenomena is expected to be observed clearly. In order to observe such an interface contribution, I chose tantalum (Ta). Since the spin-orbit interaction in Ta is strong enough to induce the current induced magnetization switching, it is useful to investigate the property of spin Hall effect when using epitaxial Ta layer. In addition, the magneto tunnel junction device fabricated on top of Ta layer shows more than hundred percent of magneto tunnel resistance ratio, and this property is significant for the practical application. Therefore, the objective of this doctoral thesis is to enhance the spin Hall effect in epitaxial Ta/CoFeB hetero structure by focusing on the interface contribution. In order to achieve this objective, I focused on the quantum interference effect, spin Hall magneto resistance measurement, harmonic Hall measurement, and magnetization switching measurement. First of all, I tried to characterize the property of epitaxial Ta at low temperature by analyzing quantum correction to the conductivity. Then, spin Hall angle of epitaxial Ta was estimated at room temperature by using Ta/CoFeB hetero structure. Finally, the magnetization switching property was characterized. The spin transport property of epitaxial Ta was characterized by comparing conventional amorphous Ta by using the measurements shown above. The structure of this doctoral thesis is following.

In Chapter 1, the fundamental concepts and the important previous research are introduced. Then the objective of this research is explained.

In Chapter 2, the measurement methods are explained.

In Chapter 3, the crystal structure and the quality of epitaxial Ta thin film is characterized. The device fabrication process is also explained here. The quality of the epitaxial Ta thin film was characterized by using X-ray diffraction, transmission electron microscopy, and atomic force microscopy. According to these characterization, I have confirmed that the epitaxial Ta thin film is surely epitaxial film, and the surface of it is

flat.

In Chapter 4, I firstly show the spin relaxation mechanism both of epitaxial Ta and amorphous Ta single layer thin films by focusing on the quantum interference effect at low temperature. Since quantum interference effect enables us to estimate the spin-orbit length without using any ferromagnet layer, the property of Ta single layer can be investigated. As a result, the spin relaxation mechanism of epitaxial Ta is D'yakonov-Perel' mechanism which is originated from Rashba spin-orbit coupling at the interface, although Rashba spin-orbit coupling is important in the semiconductor hetero structure. On the other hand, the spin relaxation mechanism in amorphous Ta is Elliott-Yafet mechanism which is normally observed in metal system. This observation is due to the longer mean free path in epitaxial Ta than conventional polycrystalline or amorphous Ta.

In Chapter 5, the experimental results of spin Hall magneto resistance and harmonic Hall measurement are shown here. Since we have confirmed the D'yakonov-Perel' spin relaxation mechanism, the interface contribution is expected to be significant even in the room temperature. Therefore, I fabricated Ta/CoFeB hetero structure device, and compare the property of spin Hall effect between epitaxial and amorphous Ta under layer device. In this chapter, I use in-plane magnetized CoFeB layer. Spin Hall magneto resistance measurement and harmonic Hall measurement can be done by using identical device series, thus the complemental estimation of the spin Hall angle is possible. Consequently, the spin Hall angle obtained in the epitaxial Ta devices is up to two times larger than that in the amorphous Ta devices. Whereas the field-like current induced effective field, which stems from Rashba spin-orbit coupling, in the epitaxial Ta device is almost same as that in the amorphous Ta device. These experimental observations suggest that the Rashba spin-orbit coupling is not significant at room temperature, but the interface spin mixing conductance seems to be modulated by using epitaxial Ta under layer. Although this result looks contradicting to the result obtained in Chapter 4, the result gives a knowledge that the Rashba spin-orbit coupling at Ta/CoFeB interface is not stronger than that in Ta/oxide interface, and even the Rashba spin-orbit coupling exists, it is not very significant at room temperature. This chapter is the main topic of this doctoral thesis.

In Chapter 6, current induced magnetization switching property of epitaxial Ta/CoFeB structure is shown here. Since the large spin Hall angle was obtained in the epitaxial Ta/CoFeB device, improvement of the magnetization switching property is expected. In this chapter, I use perpendicularly magnetized CoFeB layer. Previously, the field free magnetization switching has been reported in Ta/CoFeB/MgO structure with wedged CoFeB or MgO layer. Therefore, I expected to observe the field-free magnetization switching by making wedged Ta layer device. The advantage of achieving the field-free magnetization switching by using wedged Ta layer device is that one can make the homogeneous CoFeB and MgO layer, and it contributes to the homogeneous property of magnetic tunnel junction on top of Ta layer. However, in case of the device of previous research, the expected tunnel magneto resistance is quite different even on the same

chip. Therefore, the field-free magnetization switching technique here is quite useful for the practical application. As a result, field-free magnetization switching is observed both in epitaxial Ta and amorphous Ta device. At the same time, I also confirm the hysteresis loop shift depends on the strength and the polarity of the input current. This is the strong evidence to support the observation of field-free magnetization switching. Although the interface contribution to the magnetization switching critical current density seems to be larger in the epitaxial Ta device than that in the amorphous Ta device, estimated critical magnetization switching current density of the epitaxial Ta device is larger than that in the amorphous Ta device, as well as the strength of the current induced effective magnetic field of epitaxial Ta device is smaller than that in amorphous Ta device. This is due to the domain wall pinning effect in CoFeB on epitaxial Ta layer.

In Chapter 7, the summary and the conclusion of this study is noted.

In summary, I focused on the interface contribution to the spin transport property. What I find out in this thesis is that the significance of Rashba spin-orbit interaction at low temperature, the difference of the Ta/CoFeB interface spin mixing conductance between epitaxial and amorphous Ta/ CoFeB hetero structure, mentioned in the Chapter 4 and the Chapter 5, respectively. The knowledge obtained in this doctoral thesis is important to understand the underlying physics of the spin orbit torque as well as to show the guideline of the device fabrication. Although the benefit of making epitaxial Ta is not confirmed when performed the magnetization switching experiment, the new findings of the field-free magnetization switching is quite important for the practical application shown in Chapter 6. I believe that since the attempt to fabricating Ta/CoFeB system with epitaxial Ta layer and to observe the spin dependent phenomena is the first one in the world, the knowledge obtained in this thesis is useful for the spintronics research field.

# 目次

## 第1章 研究領域の概観、研究の意義

1.1 スピントロニクスと本研究の研究背景	1
1.2 スピン軌道相互作用	1
1.3 スピン流	2
1.4 スピンホール効果と逆スピンホール効果	4
1.5 Rashba 効果	6
1.6 スピン軌道トルク	6
1.7 金属系におけるスピンホール効果、ラシュバ効果に関連する研究	11
1.8 本研究の目的と意義	15
1.9 本論文の構成	16
第1章 参考文献	18

## 第2章 測定原理および実験手法

2.1 量子干渉効果に着目した測定・測定原理	23
2.1 量子干渉効果に着目した測定・実験手法	27
2.2 スピンホール磁気抵抗効果に着目した測定	30
2.3 ハーモニクホール測定	40
第2章 参考文献	47

## 第3章 薄膜成長・デバイス作製

3.1 Ta 層の結晶構造の評価	49
3.2 原子間力顕微鏡による Ta 層表面粗さの評価	53
3.3 デバイス構造とデバイス作製プロセス	54
第3章 小括	55

## 第4章

### エピタキシャル $\alpha$ -Ta 薄膜中の特異なスピン緩和現象

4.1 Ta 薄膜中のスピン緩和機構を議論する方針	56
4.2 Ta 薄膜の基礎物性値	57
4.3 磁気電導度特性の評価とその解析	60
4.4 考察・エピタキシャル Ta 薄膜のスピン緩和機構	66
第4章 小括	71
第4章 参考文献	72



## 第5章 エピタキシャル $\alpha$ -Ta/CoFeB 構造におけるスピnhall効果の強化

5.1 作製した薄膜試料の積層構造と成長条件	73
5.2 CoFeB 層および AlO <sub>x</sub> 層の結晶構造の評価	75
5.3 CoFeB 層の磁化特性の評価	75
5.4 デバイスの基礎的な電気伝導特性	76
5.5 スピnhall磁気抵抗測定のセットアップ	79
5.6 角度依存磁気抵抗測定	81
5.7 磁気抵抗測定の解析	83
5.8 余剰の磁気抵抗効果に関する考察	85
5.9 ハーモニクホール測定のセットアップ	86
5.10 ハーモニクホール測定の生データとその解析	87
5.11 ハーモニクホール測定の考察	94
5.12 一連の測定を包括した考察	95
第5章 小括	99
第5章 参考文献	100

## 第6章 Ta 層を傾斜膜とした Ta/CoFeB/MgO 構造における外部磁場フリー磁化反転

6.1 研究背景・外部磁場フリー電流誘起磁化反転に関する先行研究	101
6.2 デバイス構造	102
6.3 外部磁場フリーの磁化反転	103
6.4 電流誘起有効磁場によるヒステリシスループシフト	104
6.5 電流誘起有効磁場の定量評価	108
6.6 考察・電流誘起有効磁場の起源	112
第6章 小括	115
第6章 参考文献	116

## 第7章 総括・結論 118

## 研究業績 120

## 謝辞 123

## 物理量の定義

記号	対応する物理量	単位
$B_{X,Y,Z}$	$X, Y, Z$ 方向に印加した外部磁場	T
$B_e$	弾性散乱長に対応した特性磁場	T
$B_{SO}$	スピン軌道長に対応した特性磁場	T
$B_\phi$	位相緩和長に対応した特性磁場	T
$B_{DL}$	$X$ 方向の電流誘起有効磁場 (DL field)	mT
$B_{FL}$	$Y$ 方向の電流誘起有効磁場 (FL field)	mT
$D$	拡散係数	cm <sup>2</sup> /s
$d_{Ta}$	Ta層の膜厚	nm
$e$	電荷素量	$1.602 \times 10^{-19}$ C
$h$	プランク定数	$6.626 \times 10^{-34}$ Js
$\hbar$	換算プランク定数	$1.054 \times 10^{-34}$ Js
$L_e$	平均自由行程	nm
$L_{SO}$	スピン軌道長	nm
$L_\phi$	位相緩和長	nm
$\rho_{Ta}$	Ta層の比抵抗	$\mu\Omega$ cm
$\lambda_s$	一般のスピン緩和長	nm
$\lambda_{Ta}$	Ta層のスピン緩和長	nm
$\theta$	極角	degree
$\theta_{SH}$	スピンホール角	—
$\phi$	方位角	degree



# 第 1 章 研究領域の概観、研究の意義

はじめに、研究の意義を目的とするためにスピントロニクスに関連する研究がどのように展開されているのかを紹介し、それと対比する形で本研究の意義を明確化していく。

## 1.1 スピントロニクスと本研究の研究背景

荷電粒子の電磁相互作用を基礎概念として今日まで目覚ましい発展を続けてきたエレクトロニクスは、我々の生活に大きな変革をもたらした。老若男女問わずスマートフォンや PC を使用するようになり、時間と場所によらずに情報の送受信が可能な世界が実現されたのは、まさにエレクトロニクスの成果の賜物である。現代社会におけるエレクトロニクスの重要性が大きくなっているのは誰の目にも明らかであるが、その発展が限界を迎えつつある分野も存在する。例えばムーアの法則[1]に代表されるように、半導体エレクトロニクスの分野では微細加工による素子サイズの小型化が限界に近付きつつあり、従来技術の延長線上に無い、新たな動作原理の素子の開発が待ち望まれている。このようなニーズを満足する可能性のある技術として、スピントロニクスが近年注目を集めている。

従来エレクトロニクスの分野では、主に粒子の持つ電荷自由度に着目して技術革新が為されてきた。一方、電荷自由度だけでなく、粒子の量子力学的な自由度であるスピン自由度(以下、単にスピンと示す)を顕に用いて新規物性を探索する研究分野をスピントロニクスと呼ぶ。スピントロニクスの分野は 90 年代以降に誕生した新たに研究分野であるにもかかわらず、巨大磁気抵抗効果[2,3]やトンネル磁気抵抗効果[4]といった、強磁性体の相対的な磁化方向の違いによって生じる新たな磁気抵抗効果が発見され、GMR ヘッドや磁気ランダムアクセスメモリなどに実用化されている。

このような 2 層の強磁性層の磁化配置が平行か反平行かに依存した磁気抵抗効果に続き、本章第 3 節で述べるスピン流の存在が実験的に観測された[5]。スピン流の発見は、スピン角運動量の輸送を実現するという意味でスピントロニクスの新たな地平を切り開いた。特に、このスピン流を用いた角運動量の受け渡しによる磁化方向の制御に関する研究は注目を集めている。その方式の一つとしてスピン軌道トルクは特に世界中で盛んに研究が為されている。本論文においても、このスピン軌道トルクに着目した研究について言及していく。まず初めに、本章では研究の背景を説明していくために必要な前提知識を導入していく。

## 1.2 スピン軌道相互作用

スピン軌道相互作用(Spin orbit interaction : SOI)は、粒子のもつ軌道自由度とスピン自由度の混ざり合いの程度を表す量である。この効果はスピントロニクスの研究分野において中心的な役割を担うものである。SOI は相対論的な効果であり、ディラック方程式を導く過程で自然に表れる効果である。SOI は電子に働く有効的な磁場として解釈されるが、このように解釈される理由を以下に述べる[6]。真空中での SOI のハミルトニアンは以下のように表現される。

$$H_{SO} = -\mu_B \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \frac{\mathbf{p} \times \mathbf{E}}{2m_0 c^2} \right), \quad (1.1)$$

ここで、 $\mu_B = e\hbar/m_0$ はボーア磁子、 $m_0, \boldsymbol{\sigma}, c$ はそれぞれ自由電子の質量、パウリ行列、光速である。この SOI のハミルトニアンと Zeeman ハミルトニアン  $H_Z$  を比較することを考える。

$$H_Z = -\mu_s \cdot \mathbf{B} = \frac{1}{2} g \mu_B \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}_{ext}, \quad (1.2)$$

ここで、 $\mu_s = -g\mu_B \mathbf{S}/\hbar$ は磁気モーメントを表し、 $g$ は電子の $g$ 因子で、真空中では-2程度の値をとる。 $\mathbf{S} = \hbar \boldsymbol{\sigma}/2$ はスピン角運動量を表す。式(1.1)と(1.2)を比較すると、有効磁場  $\mathbf{B}_{eff}$  として、

$$\mathbf{B}_{eff} = \frac{\mathbf{p} \times \mathbf{E}}{2m_0 c^2}, \quad (1.3)$$

を得ることができる。分母の  $2m_0 c^2$  は真空中における電子-正孔対の生成に必要なエネルギーギャップに対応し、ディラックギャップと呼ばれる。このエネルギーは MeV オーダーとなるため、SOI は真空中では小さな値となる。しかし、固体中の電子では、この  $2m_0 c^2$  の部分がバンドギャップに置き換わり、半導体中では数 eV のオーダーとなるため、無視できない程に大きな効果として現れてくる。ここに見るように、SOI に関して本質的に重要な点は、固体中を運動する粒子に対して、SOI は有効的な磁場として働くという事である。このような SOI の性質のために、スピン流が生成され、そのスピン流によって磁化方向の制御が可能になるのである。このような意味で、SOI は本研究の根幹を為す概念であると言える。

### 1.3 スピン流 [7-9]

スピン( $\uparrow, \downarrow$ )をもつ電子の流れ $J_\uparrow, J_\downarrow$ を用いて、電流 $J_c$ は以下のように与えられる

$$J_c = e(J_\uparrow + J_\downarrow), \quad (1.4)$$

一方で、スピン流 $J_s$ は以下のように与えられる。

$$J_s = -\frac{\hbar}{2e}(J_\uparrow + J_\downarrow), \quad (1.5)$$

非磁性金属中のスピン輸送を考える。スピンの $\sigma = (\uparrow, \downarrow)$ の電子による電流 $J_\sigma$ がドリフト電流 $J'_\sigma$ と拡散電流 $J^D_\sigma$ の和で表され则认为と、

$$J_\sigma = J'_\sigma + J^D_\sigma = \sigma_\sigma \mathbf{E} + eD_\sigma \nabla n_\sigma, \quad (1.6)$$

ここで、スピンの $\sigma$ の電子の伝導率 $\sigma_\sigma$ と、拡散係数 $D_\sigma$ の間には以下のようなアインシュタインの関係式が存在する。

$$\sigma_\sigma = e^2 D_\sigma N_\sigma(E_F), \quad (1.7)$$

ここで、 $N_\sigma(E_F)$ はスピンの符号が $\sigma$ の電子のフェルミ面における状態密度である。スピンの $\sigma$ の電子の電気化学ポテンシャル $\mu_\sigma$ は

$$\mu_\sigma = -e\Phi + \delta n_\sigma / N_\sigma(E_F), \quad (1.8)$$

で与えられる。 $\mathbf{E} = -\nabla\Phi$ に注意すると、

$$J_\sigma = \frac{\sigma_\sigma}{e} \nabla \mu_\sigma, \quad (1.9)$$

という形で $J_\sigma$ を書き換えることができる。これを $J_s$ の表式(1.2)に代入すると、

$$J_s = -\frac{\hbar\sigma}{2e^2} \nabla \delta \mu_s, \quad (1.10)$$

という形でスピンの流が表現されることがわかる。ここで、 $\delta\mu_s = \mu_\uparrow - \mu_\downarrow$  はスピン蓄積と呼ばれる非平衡量であり、式(1.10)から明らかなように、スピン蓄積の空間変化が存在することによってスピン流が生じる。ただし、スピン流は定義に任意性があることに注意する必要がある。ここに示すようなスピン流は角運動量の流れであり、このスピン流を強磁性体層に注入することにより、強磁性体の磁化制御が可能となる。以下では代表的なスピン流生成手法である、スピンホール効果と Rashba-Edelstein 効果について言及していく。

## 1.4 スピンホール効果と逆スピンホール効果 [10,11]

本章第 2 節で述べたスピン軌道相互作用が重要な役割を果たす現象の 1 つとして、スピンホール効果 (spin Hall effect : SHE) が挙げられる。SHE は、SOI の強い材料に電流を印加すると、スピン依存散乱に起因してスピン流が生じる現象である。SHE は内因性の効果と外因性の効果の 2 種類に分類され、外因性の効果は更にサイドジャンプとスキュー散乱に分類される。これらの機構における SHE の違いに関して説明してゆく。

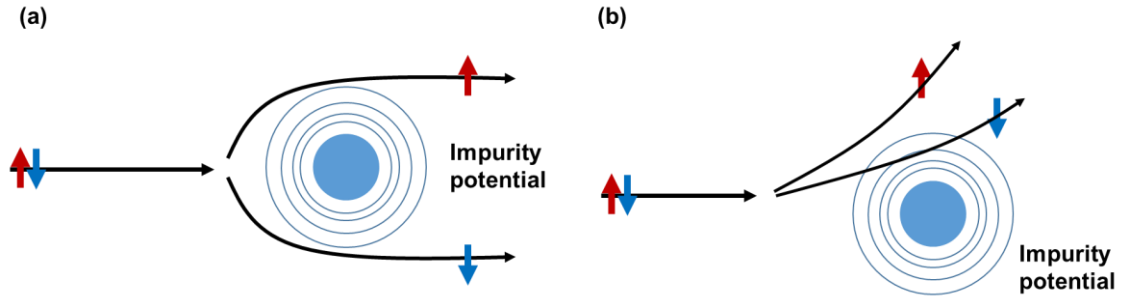


図 1.1: (a)サイドジャンプと(b)スキュー散乱による SHE の概念図

### ・内因性スピンホール効果 [12,13]

内因性の効果は、バンド構造に由来して生じる SHE であり、SOC のバンド構造に対する効果が重要な役割を果たす。内因性の効果は以下に示す外因性の効果とは異なり、散乱を受けた電子が次の散乱を受けるまでの間にスピン流が生成される。内因性の効果は近年の研究では Berry 曲率を用いて表現できることが知られている。内因性の効果によるスピンホール伝導率  $\sigma_{int}^{SH}$  は Berry 曲率  $\Omega_n^z(\mathbf{k})$  を用いて

$$\sigma_{int}^{SH} = \frac{e}{\hbar} \sum_{\mathbf{k}} \Omega_n^z(\mathbf{k}) = \frac{e}{\hbar} \sum_{\mathbf{k}} \sum_n f_{\mathbf{k}n} \Omega_n^z(\mathbf{k}), \quad (1.11)$$

$$\Omega_n^z(\mathbf{k}) = \sum_{n' \neq n} \frac{2 \text{Im}\{\langle \mathbf{k}n | j_y | \mathbf{k}n' \rangle \langle \mathbf{k}n' | v_y | \mathbf{k}n \rangle\}}{(\epsilon_{\mathbf{k}n} - \epsilon_{\mathbf{k}n'})^2}, \quad (1.12)$$

と表すことができる。 $v_y$ はy方向(電流印加方向と試料面直方向のどちらにも垂直な方向)への電子の速度であり、 $\mathbf{k}$ は電子の波数、 $n, n'$ はそれぞれバンドの指数を表す。 $f_{\mathbf{k}n}$ はフェルミ分布関数である。 $\sigma_{int}^{SH}$ はフェルミ面におけるスピン偏極 $\langle \mathbf{l} \cdot \mathbf{s} \rangle_F$ に比例し、

$$\sigma_{int}^{SH} \approx \frac{e}{4a} \frac{\langle \mathbf{l} \cdot \mathbf{s} \rangle_F}{\hbar^2}, \quad (1.13)$$

と表すことができる。内因性 SHE の場合には $\sigma_{int}^{SH}$ は試料の電気伝導率に依存しない。

・ 外因性スピンホール効果

外因性の効果はスピン依存散乱によって生じる。このようなスピン依存散乱のうち、波束中心が保持されるものをサイドジャンプ [14]、波束中心の移動を伴うものをスキュー散乱 [15]と呼ぶ。サイドジャンプ、スキュー散乱に由来するスピンホール伝導率をそれぞれ $\sigma_{sj}^{SH}$ ,  $\sigma_{ss}^{SH}$ とすると、

$$\sigma_{sj}^{SH} = \frac{e^2}{h} \eta_{so} n, \quad (1.14)$$

$$\sigma_{ss}^{SH} = -\frac{2\pi}{3} k_F^2 \eta_{so} [N(0) u_{imp}] \sigma_N, \quad (1.15)$$

と表すことができる。 $\sigma_{sj}^{SH}$ は外因性の機構による SHE であるにもかかわらず、電気伝導率によらずに決まる。一方で  $\sigma_{ss}^{SH}$ は試料の電気伝導率に依存する量である。サイドジャンプの機構による寄与は、ポテンシャルの分布が不均一であるような系や、単一の元素から構成される系では無視できるほど小さいことが理論、実験の両面から明らかとなっている。スキュー散乱の機構による寄与は、試料の電気伝導率が高い系において支配的になる。

いずれの機構においても印加電流と生成されるスピン流、そしてスピン偏極の方向をそれぞれ  $\mathbf{j}_c, \mathbf{j}_s, \mathbf{s}$  と表すこととすると、これらは以下に示すような関係を持つ。

$$\mathbf{j}_s \propto \mathbf{j}_c \times \mathbf{s}, \quad (1.16)$$

この式から、スピン流は印加電流方向およびスピン偏極方向のどちらにも垂直な方向に流れるという事がわかる。スピン流  $\mathbf{j}_s$  が印加電流に対してどの程度生成するのかを表す、いわば材料のスピン流生成効率の性能指数となる物理量としてスピンホール角  $\theta_{SH}$  を以下のように定義する。



$$\theta_{SH} \propto \frac{j_s}{j_c}, \quad (1.17)$$

これは式の通り、単位電流密度あたりに生じるスピンの割合を示す量である。また、この SHE の逆効果として、逆スピンホール効果 (inverse spin Hall effect : ISHE) が挙げられる。ISHE は電流の試料にスピン流を注入すると電流が生じる現象であり、スピンの検出手法の一つとして広く知られている。以上に示した SHE や ISHE はスピントロニクス分野でも重要な研究テーマとなっている。なぜなら、スピンホール効果は電流によってスピン流を生成する手法であり、後述するようにこの SHE(および Rashba 効果)によって生じたスピン流を起源として磁化方向を制御する手法が実現されており、低消費電力かつ不揮発なメモリデバイスへの応用が期待されているからである。そのため、電流によるスピン流生成の性能指数、言い換えればスピンホール効果の強さの指標であるスピンホール角  $\theta_{SH}$  を定量的に評価し、材料の持つスピン流生成効率を物性値として決定することはスピントロニクスの 1 つの重要な課題であり、多くの研究グループが盛んに研究している。しかし、この  $\theta_{SH}$  を材料固有の物性値として一意に定めることは困難であり、現在までのところ達成されていない。

## 1.5 Rashba 効果

Rashba 効果(Rashba effect : RE)[16]は特に空間反転対称性の破れている系で生じるスピン軌道相互作用である。定性的には、2つの異種材料の界面(または特定の材料と真空の界面)を作るとその界面では一般的にフェルミ面が一致しないので、界面電場が生じる。その界面電場を伝導電子が通過することによって、有効磁場が生じるという説明が可能である。RE のハミルトニアン  $H_R$  は以下の式で表すことができる。

$$H_R = \frac{1}{\hbar} \alpha_R \cdot (\mathbf{p} \times \boldsymbol{\sigma}), \quad (1.18)$$

RE は半導体二次元電子ガス中で重要な役割を果たし、D'yakonov-Perel'(DP)機構のスピン緩和[17]の原因となるため、半導体材料中では電子スピンを電界制御するための手段として、また電子スピンの長距離輸送を目指し、DP 機構のスピン緩和を抑制するための研究が為されてきた[18]。しかし、2013 年に Sánchez らが Ag/Bi 界面における Rashba-Edelstein 効果(Rashba-Edelstein effect : REE)による有効的なスピン流-電流変換効率の増大を報告した[19]ことをきっかけに、金属系における RE に対する関心が急速に高まっていった。

## 1.6 スピン軌道トルク

スピン軌道トルク (spin-orbit torque : SOT) は SOI を起源とした有効磁場が磁化に与える有効的なトルクである。SOT は、スピントランスファートルク (spin-transfer torque : STT) に対して筆者が知る限り 3 つの優位性を持っている。1 つ目は期待される角運動量の輸送効率が SOT の方が高いことである。STT の場合は電子のもつスピン角運動量をハード層からフリー層に輸送するため、その角運動量の輸送効率はスピン角運動量の  $\hbar/2$  が上限となる。しかし、SOT の場合にはスピン角運動量  $\hbar/2$  に加えて軌道角運動量の輸送も行うことが可能であると期待されるため、SOT の角運動量の輸送効率は  $\hbar/2$  を超えることが可能であると期待される。そのため、SOT は STT に比べて高効率な磁化反転が可能であると期待されている。2 つ目の優位性は、スケーラビリティの違いである。STT デバイスの場合は素子を微細化するほど素子の電気抵抗が大きくなるために、必要な書き込み電流密度が大きくなってしまい、微細化が困難である。一方で、SOT デバイスの場合は書き込み電流のパスと読出し電流のパスが独立しているため、素子を微細化するほど強磁性体の全体の磁気モーメントは少なくなるので、必要な書き込み電流密度を減少させることができる。このような理由から、期待されるスケーラビリティの高さも SOT の方が勝っていると考えられている。最後に 3 つ目は、素子の耐久性の違いである。STT デバイスの場合は電流を、トンネルバリアを通して流さなくてはならないが、トンネルバリアの特性は書き込み回数が増えるにつれて劣化し、書き込み回数が増えると絶縁破壊を起こしやすくなる。一方で SOT デバイスの場合は、書き込み電流をトンネルバリアに流す必要が無いので素子の長期的な耐久性が STT デバイスに比べて高いと考えられている。以上のような優位性を理由に、SOT に関する研究はデバイス応用だけではなく、未だ完全には明らかとなっていないその起源に関しても盛んに研究されている。STT デバイスと SOT デバイスの違いを以下の図 1.2 に示す。

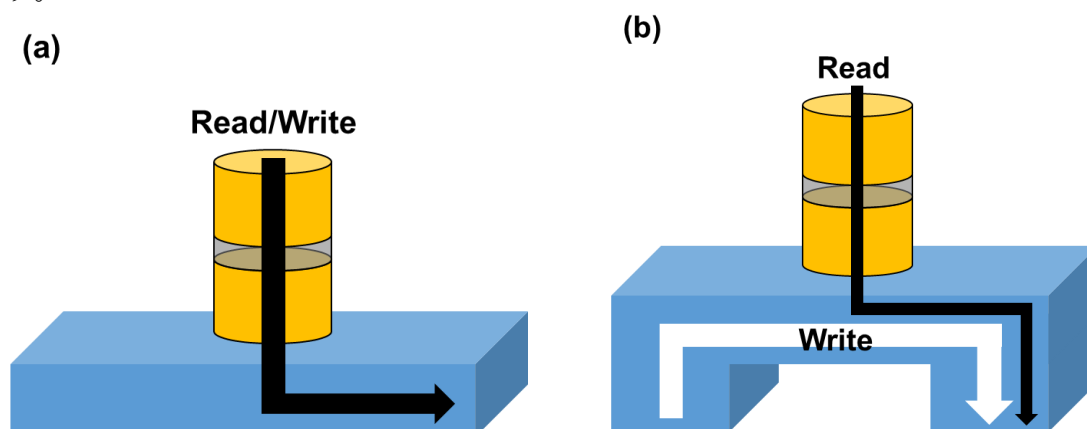


図 1.2:(a) STT(2 端子)デバイスと (b) SOT (3 端子)デバイスの読出し電流(Read)および書き込み電流(Write)のパスの模式図。

スピン軌道トルクは、磁化に加わる一般的なトルクの表式

$$\mathbf{T} = \mathbf{m} \times \mathbf{B}, \quad (1.19)$$

に関して、外部磁場  $\mathbf{B}$  をスピン軌道相互作用による電流誘起有効磁場  $\mathbf{B}^{eff}$  に置き換えたものである。本節ではこの SOT の代表的な 2 つの起源に関して初めに説明し、SOT を議論する上で重要になるスピンミキシングコンダクタンス、および近年報告された 3 次元的な Rashba 界面の取り扱いによって生じる新規な界面由来のスピン流生成に関して言及する。

#### ・ダンピングライクトルク

ダンピングライクトルク (damping-like torque : DL torque) またはスロンチェフスキーライクトルク (Slonchevski-like torque : SL torque) は主に SHE に由来する磁化に対するトルクである。これは SHE によって生じた HM/FM 界面でのスピン蓄積によってスピン角運動量が強磁性層に輸送されることで生じるトルクである。この時に DL torque の起源となる有効的な磁場をダンピングライクフィールド (damping-like effective field : DL field) と呼ぶ。

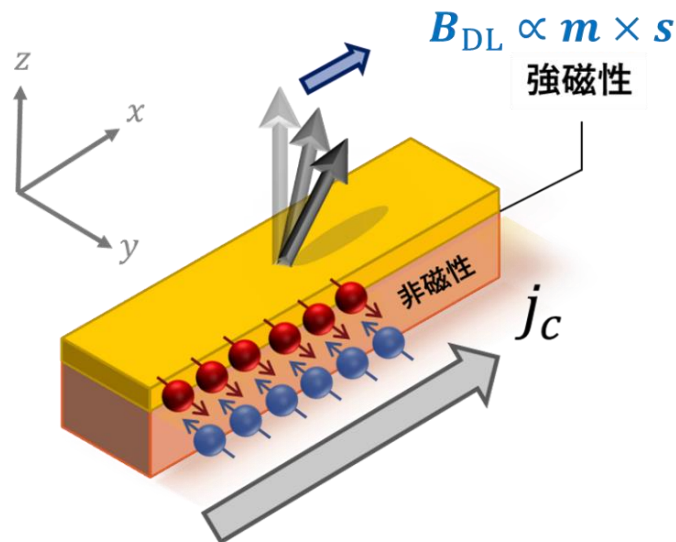


図 1.3 : DL field の概念図。

DL field  $\mathbf{B}_{DL}$  および DL torque  $\mathbf{T}_{DL}$  は以下のような方向に働く。

$$\mathbf{B}_{DL} \propto \mathbf{m} \times \mathbf{s}, \quad (1.20)$$

$$\mathbf{T}_{DL} \propto \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{s}), \quad (1.21)$$

DL field の主な起源は、SHE によって  $\mathbf{s}$  方向に偏極したスピンの強磁性体/非磁性体界面に蓄積し、交換相互作用を介して強磁性体内部へ吸収されることで磁化方向を変調する。この磁化方向の変調が外部磁場によって行われたものだと考えた時、その効果は式(1.20)のように表現される。図 1.4 に示すように、DL field は磁化を  $z$  軸方向から外部磁場を印加して面直方向から傾けた際に  $z$  方向成分の有効磁場を生じる。この有効磁場の  $z$  成分が存在することによって磁化反転が行われる。そのため、DL field が大きな材料系、すなわちその起源となる SHE が強い材料系は磁化反転を高効率で行うのに有利であると言える。しかし近年、界面におけるスピンの散乱や RE が DL field と同様の対称性の有効磁場を生じることが報告されており、実際の描像はここに述べたように単純なものではなく、むしろ混沌とした状況であると言える。

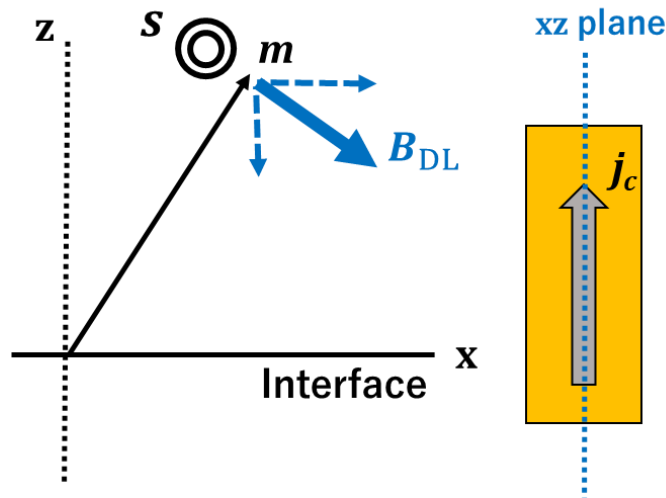


図 1.4 : DL field の磁化に対する作用。

## ・フィールドライクトルク

フィールドライクトルク (field-like torque : FL torque) は主に界面の Rashba 効果を起源とする効果であると考えられている。対応する電流誘起有効磁場をフィールドライクフィールド (field-like field : FL field) と呼ぶ。

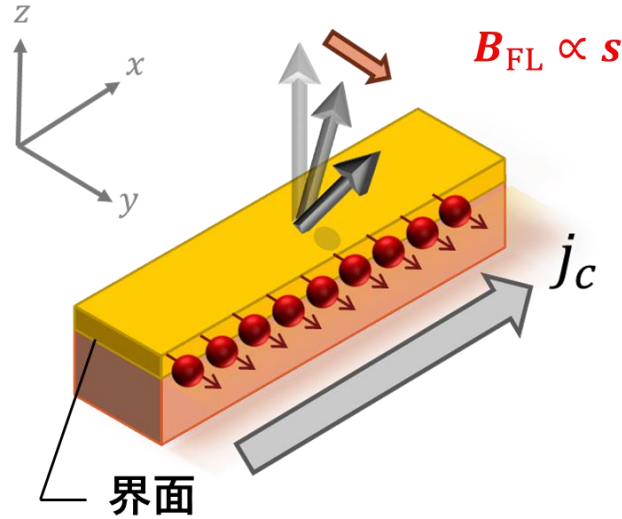


図 1.5 : FL field の概念図。

FL field  $\mathbf{B}_{FL}$  および FL torque  $\mathbf{T}_{FL}$  は以下のような方向に働く。

$$\mathbf{B}_{FL} \propto \mathbf{s}, \quad (1.22)$$

$$\mathbf{T}_{FL} \propto \mathbf{m} \times \mathbf{s}, \quad (1.23)$$

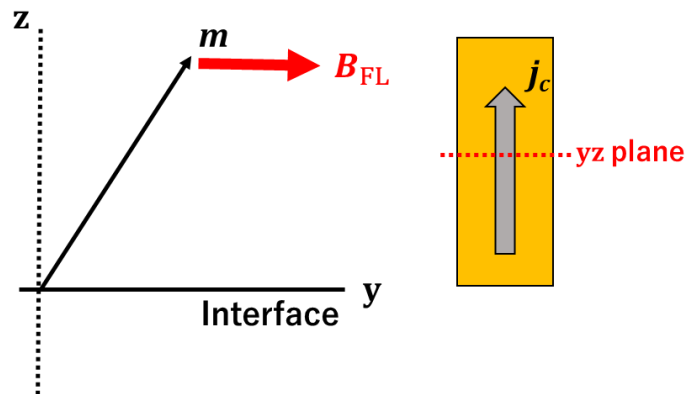


図 1.6: FL field の磁化に対する作用。

FL field の主な起源は、REE によって生じた強磁性体/非磁性体界面のスピン蓄積が強磁性層の磁化と交換結合的にカップリングすることにより、スピン蓄積と一致する方向に磁化が有効的な磁場を感じるという形で説明できる。そのため、図 1.6 に示したように、FL field は面直の磁化に対して  $z$  軸成分の有効磁場を生じないため、磁化反転に大きく寄与することは無いと考えられていた。しかし最近の研究では、FL field は磁化反転を補助する働きを有していることが明らかになっている[20]。そのため DL field とともに FL field も磁化反転に対して重要な働きを及ぼすものと認識されつつある。

以上に述べたように、異なる 2 種類の対称性を持つスピン軌道トルクと、その起源となる電流誘起有効磁場が存在し、これらの起源はまだ完全に解明されていない。更に、強磁性/非磁性体界面を考慮すると、この事情は更に複雑となる。

### ・界面由来のスピン軌道トルク

ここまで述べた内容は、バルクで生じた SHE によるスピン流は DL field を生じ、界面で生じた REE によるスピン流は FL field を生じるという議論であった。しかし、実際にはこれらは完全に独立な現象ではない。つまり、SHE に由来する FL field および RE に由来する DL field が存在することが近年示唆されている。まず、強磁性/非磁性体界面に到達したスピン流はその全てが強磁性体に吸収されるわけではなく、界面で反射されたり[21,22]、格子にスピン角運動量が受け渡されたりする[23,24]。そのため、正確な SHA を評価するためにはこの界面のスピン透過率の大きさを考慮する必要がある。SHE に由来する FL field に関しては、SHE によって生じたスピン流が界面で多重散乱を受けることにより、FL field と同じ対称性の有効磁場を生じることが指摘されている[25]。また、RE に由来する DL field は強磁性/非磁性体界面で RE による有効磁場を受け、偏極したスピンの多い層から少ない層に拡散していく効果(spin-orbit filtering)と RE による有効磁場によってスピンの歳差運動を行い、面外の有効磁場成分を得る効果(spin-orbit precession)の 2 つの効果が存在する。これらの効果は理論[26,27]、実験両面から実証されている[28,29]。以上に述べたように、界面の効果を考慮した際には電流誘起有効磁場の起源は非常に複雑なものとなり、その同定を困難なものとしている。

## 1.7 金属系におけるスピントロニクス効果、ラッシュバ効果に関連する研究

何度も言及しているように、SOI はスピントロニクスにおいて中心的な概念であるが、SOI の現れ方は系によって様々である。ここではこのような SOI の中でも、本研究にかかわりが深い SHE および RE を顕に用いた、本実験と関連のある重要な先行研究を紹介し、2020 年現在の関連分野の大まかな全体像を、筆者の知識が及ぶ範囲で以下にまとめる。

### ・スピントロニクス効果に関する研究の黎明期

SHE は 1997 年に M. I. D'yakonov によって理論的に予言され、2004 年に Y.K. Kato らが光学的な測定を用いて初めて報告し[30]、S. Valenzuela らが初めて電氣的に観測した現象である[31]。当初は n-GaAs の二次元電子ガス中で生じた SHE を観測する研究が行われていた。そのため、この時期の研究では当時主流であった半導体スピントロニクスの研究の領域における発見であった。

同時期には非局所スピントロニクス (non-local spin valve : NLSV) を用いた実験では、SOI の強い Pt ではスピントロニクスおよび逆スピントロニクス効果が生じることが明らかとなった[32]。磁化のダイナミクスによってスピントロニクスを生じるスピントロニクスの手法が確立されたのもこの時期である。スピントロニクスの手法[33]は ISHE を観測する有効な手法として知られている。以上のような、現在でも広く用いられているスピントロニクスの検出手法が提案され始め、研究が盛んになり始めたのがこの期間となる。これらの手法はスピントロニクスに依らない様々なシグナルを含んでいる可能性があることが後の研究によって明らかになっていったため、得られた SHA は現在の測定手法と比較すると過大評価、過小評価をしているものも存在するが、スピントロニクス検出の先駆的な研究として意義深いものである。

### ・HM/FM 構造における SOT の観測 (2008 年～2013 年)

2011 年に I. M. Miron らは Pt/Co/AlO<sub>x</sub> の三層構造に電流を印加することで磁化反転が可能であることを報告した[34]。このような金属系において、電流による磁化方向が制御が可能であるという報告が注目を浴び、スピントロニクスの主な舞台と考えられていた半導体系に加えて、金属系のスピントロニクスの研究も盛んに行われるようになっていった。Miron らは論文中でその起源を界面の RE であるとしていた [35]。しかし、その後の研究で Miron らの示した電流誘起有効磁場の大きさが過大評価されていること、また磁化反転の主な起源が RE ではなく SHE であることが徐々に明らかになっていった。この時期には SOT の評価手法や、SOT に限らず、様々な手法による SHA の評価手法が確立され始めた時期である。初めに L. Liu らが Pt/Py 系においてスピントロニクス強磁性磁気共鳴 (spin transfer torque ferromagnetic resonance : STT-FMR) の手法を用いた SHA の評価手法を最初に提案した[36]。前述の手法とは異なる方法による電流誘起有効磁場の評価手法として、ハーモニクホール測定の技術が提案され始めたのもこの時期である。2012 年に C-F. Pai

らがハーモニクホール測定の原型となる測定手法を提案した[37]。この手法に基づいて J. Kim らはホール電圧の第二高調波成分を HM 層および FM 層の膜厚を変化させて詳細に調べ、SOT の起源を SHE のみで説明することができず、RE も考慮する必要があることを提案した[38]。本研究と特に関連が深く、重要な研究として 2013 年に発表された K. Garello らの研究が挙げられる[39]。この研究では第 2 章で詳細に述べるハーモニクホール測定による電流誘起有効磁場の大きさを磁化のすべての極角、方位角に対して記述する式を理論的に導出し、実験との見事な一致を果たした。先述した Sánchez らによる Ag/Bi 界面の REE に関する研究[19]が発表されたのも 2013 年である。スピホール磁気抵抗 (spin Hall magnetoresistance : SMR) の観測と理論的な理解が進んだのもこの時期であり、Nakayama ら[40]、Althammer ら[41]が初めて SMR を観測し、Pt/YIG 系において詳細な実験を行うことによって、磁気的な近接効果と SMR の切り分けに成功した。T-Y. Chen らによって SMR の詳細な理論が示されたのも同年である[42]。ここまで見てきたように、この時期には SOT や SHA を評価するための多くの手法が提案された。しかし、この時期に生じた SOT や SHA の評価方法の問題点として、測定手法によって得られた SHA の値が大きく異なるということである。この測定手法に依存した SHA の誤差が生じる問題は金属系の本質的な問題点であり、スピントロニクス分野が解決していくべき課題である。

#### ・HM/FM 構造における SOT の発展 (2013 年～現在)

この時期の研究分野の発展は様々な方向性に分化が進んでいる。HM/FM 積層構造における SOT に関連する重要な実験として、C. Avci らのハーモニクホール測定の研究が挙げられる[43]。Avci らは、従来のハーモニクホール測定の手法では異常ネルンスト効果 (anomalous Nernst effect : ANE)[44] やスピンゼーベック効果 (spin Seebeck effect : SSE)[45]が DL field と同時に観測されており、特に比抵抗の大きな材料系では DL field の値を過大評価していることを指摘した。彼らは面内磁化の系を用いて DL field と ANE および SSE の効果を切り分ける手法を提案し、DL field のより正確な定量評価を可能としたこの点に関しては 2 章で詳細に述べることにする。また、SOT の温度依存性に関しても興味深い報告が為されている。J. Kim らの報告[46]によると、ハーモニクホール測定で評価した DL field は温度依存性が非常に小さいが、FL field は非常に強い温度依存性を示す。更に FL field は測定温度を低下させるにつれて値が小さくなっていくことが示されている。これは FL field が RE に起因するものであるという考え方を基にすると直感的ではない結果である。Kim らはこの温度依存性の起源を HM/FM 界面のスピンミキシングコンダクタンスの温度依存性から説明しようと試みたが、完全に説明することはできなかった。Ta/CoFeB においてはこの研究結果以外にも X. Qiu ら、M. Cecot らが同様の報告をしている[47,48]。大きな SHA を示す特殊な材料系としてトポロジカル絶縁体 (topological insulator : TI) が挙げられる。TI は、バルクは絶縁体であるが表面は金属という、興味深い伝導特性を示す材料系である。TI は構造反転対称な結晶構造を持ち、強い SOI がある場合に、バルクのバ



ンド構造に対応した特殊な表面状態を持つ。この表面状態においては、波数方向とスピン偏極方向が1対1に対応するという優れた特性を持っているため、新たなスピン流ソースとして期待されている。実験では、2014年にSTT-FMRの測定で初めてSHAが評価された。この実験で得られたSHAの値は1より大きな値を示しており、TIの表面状態からの寄与が大きいことが示唆された[49]。

REEに関連する研究としては、先に述べた2013年のSánchezらの報告[19]から様々な報告が為された。例えばRashba-Edelstein磁気抵抗[50]やCu/BiO界面における電流-スピン流変換[51]に関する報告が為されている。SOTに関連する研究としては、S.BaekらによるCoFeB/Ti/CoFeB三層構造における外部磁場フリーの磁化反転が挙げられる[52]。重金属非磁性層を用いずに、Ti/CoFeB界面のREEによるspin precessionを誘起し、スピンの面直成分を持たせることで上部CoFeB層の外部磁場フリー磁化反転が達成可能となった。この研究はREEを顕に用いた実用的な研究として興味深いものである。

近年では反強磁性体 (anti-ferromagnet : AF) 中で生じるSHE [53]を中心に、AFを用いた材料系も盛んに研究されている。AFは漏れ磁場が無く、THz帯の高周波に応答することが可能であるため、次世代の高速デバイス実現に期待が持たれている。特に関連する研究としてPt/IrMn/[Co/Ni]構造において、アシスト磁場を印加することなく電流誘起磁化反転を実現し、更に印加電流値に依存した可変的な異常ホール効果の出力を示す特性から、ニューラルコンピューティングへの応用も期待されている[54,55]。この研究は応用可能性が高いことは言及するまでもないが、2準位系である、いわばデジタル的な電子スピンの自由度を用いて、連続的なアナログ出力を実現している点が非常に興味深い。

#### ・Ta/CoFeB系の研究

本節では、本研究で着目しているTaの性質に関する基本的な情報を示すとともに、Ta/CoFeB系の研究に関して、これまでの報告をまとめる。初めに、Taの基本的な性質について述べる。本研究で着目しているTaは2つの異なる結晶相を持つ材料である。1つはbcc構造の $\alpha$ -Taと呼ばれる構造であり、バルクのTaはこの構造となっている。 $\alpha$ -Taの比抵抗は $20\sim 40\mu\Omega\cdot\text{cm}$ 程度である。一方で、A-15構造の $\beta$ -Taと呼ばれる構造も存在し、これは薄膜でのみ観測される。 $\beta$ -Taの比抵抗は $150\sim 300\mu\Omega\cdot\text{cm}$ 程度である。スピントロニクス分野では、 $\beta$ -Taの方が大きなSHAを示すことから、盛んに研究が行われてきた。続いてTa/CoFeB系の先行研究に関して述べる。スピントロニクス分野において、Ta/CoFeB系の研究が着目され始めたのは、2010年にIkedaらがTa/CoFeB/MgO系におけるトンネル磁気抵抗を評価したところ、特定の条件下では100%を上回るトンネル磁気抵抗が観測されることを報告した[56]ことがきっかけとなった。更に、CoFeB層はMgO層との界面磁気異方性により面直磁化となることができると、集積化が期待できる点も大きな長所であることからこの系は現在も注目を集めている。そして、2012年には1.5.2小節で述べたようにL. LiuらがTa/CoFeB系におけるSTT-FMR測定とSOTによる磁化

反転の結果を示した[57]ことから、応用、基礎両面からの研究が盛んに行われるようになっていった。Ta/CoFeB 系の SOT の研究に関しては[58-63]などが先行研究として挙げられる。いずれも SHA が 0.04~0.15 程度を報告している。さまざまな重金属の結晶相を変化させて SMR により SHA を比較した研究は J. Liu らによって 2015 年に報告されている[64]。この報告によると、アモルファスのような比抵抗が高い場合の方が SHA は大きいというものであった。Ta に着目して結晶相を変化させたときに SHA がどのように変化するかという研究に関しては Mudli らが 2017 年、2018 年に 2 報の論文を報告している[65,66]が、いずれも比抵抗のみから結晶相を議論しており、詳細な結晶構造解析を伴っていない。そのため、より詳細な結晶構造と SOT の関係を調査する必要があると考えられる。以上の先行研究で明らかになったことをまとめる。Ta/CoFeB 系の長所は、Ta 中の強い SOI のために SHE が強く、隣接する強磁性体の磁化方向を SOT によって制御することが可能であること、そして Ta/CoFeB/MgO 構造を基本とした磁気トンネル接合系において良好な特性を示すことから、応用上有利であることが挙げられる。また、Ta は  $\alpha$ -Ta と  $\beta$ -Ta と呼ばれる 2 つの結晶相を持つが、これまでの先行研究ではこれらの分類に関してあまり注意を払われておらず、抵抗値から相を決定し、議論が展開されてきた。しかし、結晶構造が異なればポテンシャルの周期性も異なるため、SHA が異なる値を示す可能性を考慮する必要がある。以上のような先行研究が Ta/CoFeB 系で行われてきた。

## 1.8 本研究の目的と意義

前節の内容を踏まえて、本研究の目的をここで示すこととする。ここまで示したように、SHE や REE に関連する研究は非常に多い。しかし、これらの研究分野が完全に開拓されつくしているかと言えば決してそうではない。その中で、本研究において特に着目したのが界面の効果である。通常 SHA は系が決定されれば比抵抗の違いによってのみスケールされる。つまり、特定の系において SHA の自由度は基本的に比抵抗を制御するしかない。しかし、比抵抗は材料ごとにある程度取りうる値の範囲に限界がある。そのため比抵抗にスケールされない効果を探索することによって、実効的な SHA の大きさを制御するための自由度を向上させることは今後のスピントロニクス分野において重要である。そのような比抵抗にスケールされない現象の 1 つの例が表面、界面の効果である。例えば TI の SHA を評価する場合に、表面状態の寄与がある場合にはその SHA の値は 1 を超えることが明らかになっている。これはバルクの SHE のみを考慮すると理解しがたい結論である。本研究ではこのような界面の効果をより顕著に観測するために、エピタキシャルな Ta に着目した。エピタキシャルな系では欠陥密度が減少し、電子移動度が上がることが予想される。このような系では、金属であっても平均自由行程が膜厚と同程度になり、多結晶やアモルファスの試料と比較して界面の効果が顕著に表れてくることが期待される。スピントロニクス分野では、Ta のような基本的な材料をエピタキシャルにした場合に、多結晶の系と比較してどのような違いが得られるのかという着眼点で行われている研究は少ない。しかし、このような薄膜の構造を制御した際の変化は実用上重要な知見である。そのため本研究ではエピタキシャルな Ta 薄膜を作製し、それによって生じる新規な表面、界面由来の現象を観測し、またそれらを利用することによって既存のデバイスの機能を更に拡張することを目的とする。

## 1.9 本論文の構成

本論文は以下のような7章からなる構成となっている。ここで、各章の内容を簡潔に説明し、第1章を締めくくることとする。

### 第1章 研究領域の概観、研究の意義

本博士論文の導入として、基礎的な物理現象の定義と関連分野の先行研究概観、および研究の動機、目的を述べ、研究の意義付けを行った。

### 第2章 測定原理および実験手法

第4章以降で示す実験データを理解するために必要な知識をここで導入する。

### 第3章 薄膜成長・デバイス作製

エピタキシャル Ta 薄膜の結晶構造解析の結果およびデバイス作製手法を示した。

### 第4章 エピタキシャル $\alpha$ -Ta 薄膜中の特異なスピン緩和現象

基礎的な特性を調査するために、極低温における量子干渉効果に着目し、Ta 薄膜中のスピン緩和機構の評価を行った。

### 第5章 エピタキシャル $\alpha$ -Ta/CoFeB 構造におけるスピントラッキング効果の強化

室温での特性を評価するため、Ta/CoFeB 構造を用いてスピントラッキング角を評価した。測定手法はスピントラッキング磁気抵抗測定およびハーモニクホール測定を用いた。

### 第6章 Ta 層を傾斜膜とした Ta/CoFeB 構造における外部磁場フリー磁化反転

より実用的な貢献ができるよう、界面の Rashba 効果および DMI を用いた Ta/CoFeB 系を用いたデバイス応用に向けた研究に取り組んだ。

### 第7章 総括・結論

本研究で得られた知見を述べ、論文を締めくく。

## 第 1 章 参考文献

- [1] Excerpts from A Conversation with Gordon Moore: Moore's Law. Intel Corporation. pp. 1 (2015).
- [2] P. Grünberg, R. Schreiber and Y. Pang: Phys. Rev. Lett. **57**. 2442 (1986).
- [3] M.N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friedrich, J. Chazelas: Phys. Rev. Lett. **61**. 2472 (1988).
- [4] T. Miyazaki, N. Tezuka: J. Magn. Magn. Mater. **139**. L231 (1995).
- [5] T. Kimura, J. Hamrle, Y. Otani, Phys. Rev. B **72**, 014461 (2005).
- [6] M. Kohda and G. Salis, Semicond. Sci. Technol. **32**, 073002 (2017).
- [7] Spin Current : Sadamichi Maekawa *et al.*, Oxford Science Pubrication
- [8] スピン流とトポロジカル絶縁体 : 齋藤英二、村上修一 著、共立出版
- [9] スピントロニクス (シリーズ 21 世紀の物性) : 前川 禎通、堤 康雅 著、日本評論社
- [10] J. Sinova, S. O. Valenzuela, J. Wunderlich, C. H. Back, and T. Jungwirth, Rev. Mod. Phys. **87**, 12131259 (2015).
- [11] A. Hoffmann, IEEE Trans. Magn. **49**, 10 (2013).
- [12] S. Murakami, N. Nagaosa, and S.-C. Zhang, Science, **301**, 5638 (2003).
- [13] J. Sinova, D. Culcer, Q. Niu, N. A. Sinitsyn, T. Jungwirth, and A. H. MacDonald, Phys. Rev. Lett., **92**, 12, (2004).
- [14] L. Berger, Phys. Rev. B **2**, 4559 (1970).
- [15] J. Smit, Physica. **24**, 39 (1958).
- [16] E.I. Rashba, Sov. Phys. Solid State **2**, 1109 (1960).

- [17] M.I. D'yakonov and V.I. Perel, Sov. Phys. Solid State **13**, 3023 (1971).
- [18] K. Yoshizumi, A. Sasaki, M. Kohda, and J. Nitta, Appl. Phys. Lett. **108**, 132402 (2016).
- [19] J. C. Rojas Sánchez *et al.*, Nat. Commun. **4**, 2944 (2013).
- [20] J. Yoon, S.-W. Lee, J. H. Kwon, J. M. Lee, J. Son, X. Qiu, K.-J. Lee, H. Yang, Sci. Adv. **3**, e1603099 (2017).
- [21] W. Zhang, *et al.*, Nat. Phys. **11**, 496 (2015).
- [22] C-F. Pai, Y. Ou, L. H. Vilela-Leão, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, Phys. Rev. B **92**, 064426 (2015).
- [23] J. C. Rojas Sánchez *et al.*, Phys. Rev. Lett. **112**, 106602 (2014).
- [24] Liu, Y. *et al.*, Phys. Rev. Lett. **113**, 207202 (2014).
- [25] L. Wang, R. J. H. Wesselink, Y. Liu, Z. Yuan, K. Xia, and P. J. Kelly, Phys. Rev. Lett. **116**, 196602 (2016).
- [26] V. P. Amin and M. D. Stiles, Phys. Rev. B **94**, 104419 (2016).
- [27] V. P. Amin and M. D. Stiles, Phys. Rev. B **94**, 104420 (2016).
- [28] H. An *et al.*, Science. **4**, 2250 (2018).
- [29] S-C. Baek *et al.*, Nat. Mater. **10**, 1038 (2018).
- [30] Kato, Y. K., Myers, R. S., Gossard, A. C. and Awschalom, D. D. Science **306**, 1910–1913 (2004).
- [31] S. O. Valenzuela and M. Tinkham. Nature **442**, 176–179 (2006).
- [32] T. Kimura *et al.*, Phys. Rev. Lett. **98**, 156601 (2007).

- [33] K. Ando *et al.*, Phys. Rev. Lett. **101**, 036601 (2008).
- [34] I. M. Miron, K. Garello, G. Gaudin, P. J. Zermatten, M. V. Costache, S. Auffret, S. Bandiera, B. Rodmacq, A. Schuhl, and P. Gambardella, Nature **476**, 189 (2011).
- [35] I. M. Miron *et al.*, Nat. Mater. **9**, 230-234 (2010).
- [36] L. Liu, T. Moriyama, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, Phys. Rev. Lett. **106**, 036601 (2011).
- [37] C- F. Pai, L. Liu, Y. Li, H. W. Tseng, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, Appl. Phys. Lett. **101**, 122404 (2012).
- [38] J. Kim, J. Sinha, M. Hayashi, M. Yamanouchi, S. Fukami, T. Suzuki, S. Mitani, and H. Ohno, Nat. Mater. **12**, 240 (2013).
- [39] K. Garello, I. M. Miron, C. O. Avci, F. Freimuth, Y. Mokrousov, S. Blügel, S. Auffret, O. Boulle, G. Gaudin, and P. Gambardella, Nat. Nanotechnol. **8**, 587 (2013).
- [40] H. Nakayama, M. Althammer, Y. T. Chen, K. Uchida, Y. Kajiwara, D. Kikuchi, T. Ohtani, S. Geprägs, M. Opel, S. Takahashi, R. Gross, G. E.W. Bauer, S. T. B. Goennenwein, and E. Saitoh, Phys. Rev. Lett. **110**, 206601 (2013).
- [41] M. Althammer, S. Meyer, H. Nakayama, M. Schreier, S. Altmannshofer, M. Weiler, H. Huebl, S. Geprägs, M. Opel, R. Gross, D. Meier, C. Klewe, T. Kuschel, J-M. Schmalhorst, G. Reiss, L. Shen, A. Gupta, Y-T Chen, G. E. W. Bauer, E. Saitoh, and S. T. B. Goennenwein, Phys. Rev. B. **87**, 224401 (2013).
- [42] T-Y. Chen, S. Takahashi, H. Nakayama, M. Althammer, S. T. B. Goennenwein, E. Saitoh, and G. E. W. Bauer, Phys. Rev. B. **87**, 144411 (2013).
- [43] C. O. Avci, K. Garello, M. Gabureac, A. Ghosh, A. Fuhrer, S. F. Alvarado, and P. Gambardella, Phys. Rev. B **90**, 224427 (2014).
- [44] G. E. Bauer, E. Saitoh, and B. J. van Wees, Nat. Mater. **11**, 391 (2012).
- [45] K. Uchida, S. Takahashi, K. Harii, J. Ieda, W. Koshibae, K. Ando, S. Maekawa, and E. Saitoh,

Nature. **455**, 778-781, (2008).

[46] J. Kim *et al.*, Phys. Rev. B **89**, 174424 (2014)

[47] X. Qiu, P. Deorani, K. Narayanapillai, K. S. Lee, K. J. Lee, H. W. Lee, and H. Yang, Sci. Rep. **4**, 4491 (2014).

[48] M. Cecot, L. Karwacki, W. Skowronski, J. Kanak, J. Wrona. A. Zywczyak, L. Yao. S. Dijken, J. Barnas, and T. Stobiecki, Sci. Rep **7**, 968 (2017).

[49] A. R. Mellnik *et al.*, Nature **511**, 449–451 (2014).

[50] H. Nakayama, Y. Kanno, H. An, T. Tashiro, S. Haku, A. Nomura, and K. Ando, Phys. Rev. Lett. **117**, 116602 (2016).

[51] J. Kim *et al.*, Phys. Rev. B **96**, 140409(R) (2017).

[52] S. C. Baek, V. P. Amin, Y. Oh, G. Go, S.-J. Lee, M. D. Stiles, B.-G. Park, and K.-J. Lee, Nat. Mater. **17**, 509 (2018).

[53] J. B. S. Mendes, R. O. Cunha, O. Alves Santos, P. R. T. Ribeiro, F. L. A. Machado, R. L. Rodríguez-Suárez, A. Azevedo, and S. M. Rezende, Phys. Rev. B **89**, 140406(R) (2014).

[54] S. Fukami, C. Zhang, S. DuttaGupta, A. Kurenkov, and H. Ohno, Nat. Mater. **15**, 535-542 (2016).

[55] W. A. Borders *et al.*, Appl. Phys. Express. **10**, 013007 (2017).

[56] S. Ikeda, K. Miura, H. Yamamoto, K. Mizunuma, H. D. Gan, M. Endo, S. Kasai, J. Hayakawa, F. Matsukura, and H. Ohno, Nat. Mater. **9**, 721 (2010).

[57] L. Liu, C.F. Pai, Y. Li, H. W. Tseng, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, Science **336**, 555 (2012).

[58] T. Suzuki, I. S. Fukami, N. Ishiwata, M. Yamanouchi, S. Ikeda, N. Kasai, and H. Ohno, Appl. Phys. Lett. **98**, 142505 (2011).

[59] H. L. Wang, C. H. Du, Y. Pu, R. Adur, P. C. Hammel, and F. Y. Yang, Phys. Rev. Lett. **112**,



197201 (2014).

[60] M. Kawaguchi, K. Shimamura, S. Fukami, F. Matsukura, H. Ohno, T. Moriyama, D. Chiba, and T. Ono, *Appl. Phys. Express* **6**, 113002 (2013).

[61] M. Jamali, Z. Zhao, M. DC, D. Zhang, H. Li, A. K. Smith, and J. P. Wang, *J. Appl. Phys.* **119**, 133902 (2016).

[62] C. Zhang, S. Fukami, H. Sato, F. Matsukura, and H. Ohno, *Appl. Phys. Lett.* **107**, 012401 (2015).

[63] R. L. Conte, A. Hrabec, A. P. Mihai, T. Schulz, S. J. Noh, C. H. Marrows, T. A. Moore, and M. Kläui, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 122404 (2014).

[64] J. Liu, T. Ohkubo, S. Mitani, K. Hono, and M. Hayashi, *Appl. Phys. Lett.* **107**, 232408 (2015).

[65] R. Bansal, N. Behera, A. Kumar, and P. K. Muduli, *Appl. Phys. Lett.* **110**, 202402 (2017).

[66] A. Kumar, R. Bansal, S. Chaudhary, and P. K. Muduli, *Phys. Rev. B* **98**, 104403 (2018).

## 第2章 測定原理および実験手法

本章では、第4章以降に示した実験データを取得する際に用いた測定手法の原理および実験手法の詳細を記載する。

### 2.1 量子干渉効果に着目した測定・測定原理

量子干渉効果に着目した解析を行うために必要な基礎的な事項をここにまとめる。ここで述べている量子干渉効果は、極低温における磁気伝導度に対する量子補正を意味している。ここでは、この量子干渉効果による磁気伝導度に対する補正に関する現象論を説明する。メゾスコピックリング構造を用いた測定で観測されるAharonov-Bohm効果に代表されるように、異なるパスを通過する電子の波動関数がベクトルポテンシャルによる位相変調を受けることにより、リング構造を貫く外部磁場強度を変調することによって測定される抵抗値の周期的な振動が見られる[1]。これは異なる経路を通過する電子の波動関数が干渉した結果生じる現象であり、典型的な量子干渉効果として知られる。二重スリットの実験をメゾスコピック系において実現した実験であると捉えることもできるだろう。通常このような量子干渉効果というのは、位相緩和長 $L_\phi$ が系のスケール $L$ よりも十分に大きい時に顕著に表れる現象である。しかし、 $L_\phi \ll L$ となるような場合であっても量子干渉効果は、古典的な伝導度に対する量子補正という形で顕著な影響を及ぼす。電子の波動関数の位相情報を保ったまま、以下に示すような時間反転対称な経路を多重散乱によって形成する電子対が存在する場合を考える。

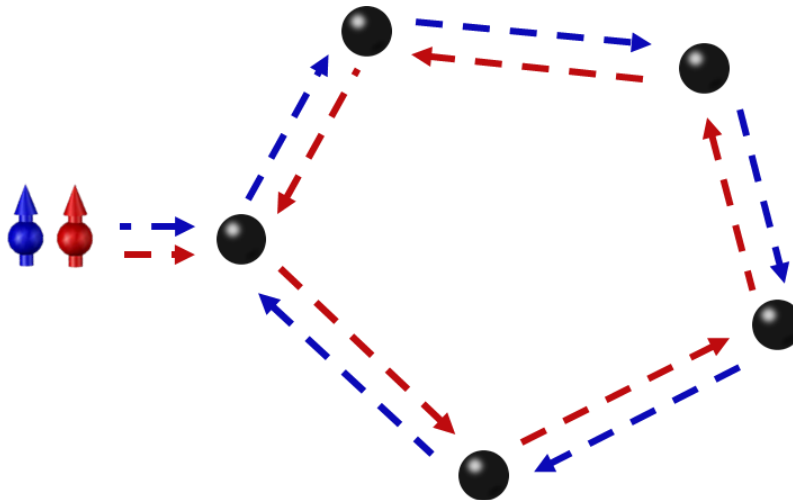


図2.1: 量子干渉効果を考える時間反転対称な散乱経路。黒丸は散乱体を表す。

一方のパスを通過する電子の波動関数の確率振幅を $A^+$ 、もう一方のパスに対するそれを $A^-$ とすると、パスを1周して初期位置に戻ってきた際には

$$|A^+ + A^-|^2 = |A^+|^2 + |A^-|^2 + A^+ A^{-*} + A^{+*} A^-, \quad (2.1)$$

が得られる。ここで、右辺の第1項、第2項は古典的な後方散乱確率に対応し、第3、4項が量子干渉効果に由来する後方散乱確率である。このように、古典的な電気伝導の理論では考慮されていなかった、弾性的な多重散乱の結果生じる量子干渉効果が、 $L_\phi$ の長い極低温においては重要な役割を果たす。このような状況をもう少し詳しく定量的に取り扱うことを考える。回転演算子を $R$ とし、初期のスピン状態を $|s\rangle$ と表すこととすると、終状態 $|s'\rangle$ は

$$|s'\rangle = R|s\rangle, \quad (2.2)$$

と表すことができる。この回転演算子は $R = R_n R_{n-1} \cdots R_2 R_1$ という形で、連続的な微小回転を表す演算子 $R_i$  ( $i = 1, 2, \dots, n$ ) の積となっている。このような回転演算子の逆方向の回転を表す演算子 $\tilde{R}$ を用いることで、式(2.2)で示した経路とは逆回りの経路を辿ったスピンの終状態を表すことができる。ここで、 $\tilde{R} = \tilde{R}_1 \tilde{R}_2 \cdots \tilde{R}_{n-1} \tilde{R}_n$ であり、 $R_i \tilde{R}_i = 1$ を満たす。 $\tilde{R}$ を $|s\rangle$ に作用させた際の終状態を $|s''\rangle$ とすると、

$$|s''\rangle = \tilde{R}|s\rangle, \quad (2.2)$$

となる。このような時間反転対称な2つの干渉経路を辿ったスピンの干渉は以下のように記述される。

$$\begin{aligned} (\langle s'| + \langle s''|)(|s'\rangle + |s''\rangle) &= \langle s'|s'\rangle + \langle s''|s''\rangle + \langle s''|s'\rangle + \langle s'|s''\rangle \\ &= 2 + \langle s''|s'\rangle + \langle s'|s''\rangle, \end{aligned} \quad (2.3)$$

オイラー角 $(\alpha, \beta, \gamma)$ を用いて表現した回転演算子は、以下のようなユニタリ行列で表現される。

$$R(\alpha, \beta, \gamma) = \begin{pmatrix} \cos \frac{\alpha}{2} e^{i(\beta+\gamma)/2} & i \sin \frac{\alpha}{2} e^{-i(\beta-\gamma)/2} \\ i \sin \frac{\alpha}{2} e^{i(\beta-\gamma)/2} & \cos \frac{\alpha}{2} e^{-i(\beta+\gamma)/2} \end{pmatrix}, \quad (2.4)$$

この回転演算子のユニタリ性を考慮すると、SOIが弱い場合には、

$$\langle s''|s' \rangle = \langle s|\tilde{R}^\dagger R|s \rangle = \langle s|R^2|s \rangle = \langle s|s \rangle = 1, \quad (2.5)$$

が得られる。 $\langle s'|s'' \rangle$ に対しても同様の計算が成り立つ。SOIが弱い場合には $R$ を決定するオイラー角の変化は微小であると考えられるため、 $R$ は常にユニタリ性を保っていると考えられる。そのような場合には式(2.5)は妥当であり、式(2.3)における古典的な寄与に対して更に2だけ確率振幅に対する量子補正が加わることとなる。SOIが強い場合はこの議論は当てはまらず、 $R^2$ の期待値を計算する必要がある。

$$R^2(\alpha, \beta, \gamma) = \begin{pmatrix} \cos^2 \frac{\alpha}{2} e^{i(\beta+\gamma)} - \sin^2 \frac{\alpha}{2} & \frac{i}{2} \sin \alpha e^{-i\beta} (1 + e^{i(\beta+\gamma)}) \\ \frac{i}{2} \sin \alpha e^{-i\gamma} (1 + e^{i(\beta+\gamma)}) & \cos^2 \frac{\alpha}{2} e^{-i(\beta+\gamma)} - \sin^2 \frac{\alpha}{2} \end{pmatrix}, \quad (2.6)$$

を用いて2成分スピノルを $|s \rangle = (a, b)$ と定義すると、

$$\begin{aligned} \langle s'|s'' \rangle &= \cos^2 \frac{\alpha}{2} (e^{i(\beta+\gamma)} |a|^2 + e^{-i(\beta+\gamma)} |b|^2) - \sin^2 \frac{\alpha}{2} \\ &\quad + \frac{i}{2} \sin \alpha \{ ab^* (e^{-i\beta} + e^{i\gamma}) + a^* b (e^{i\beta} + e^{-i\gamma}) \}, \end{aligned} \quad (2.7)$$

が得られる。値を取りうるすべてのオイラー角で平均すると、結局 $-\sin^2 \frac{\alpha}{2}$ の項の寄与のみが残り、 $\langle s'|s'' \rangle = -1/2$ が得られる。よって、SOIが強い場合には、式(2.3)は

$$(\langle s'| + \langle s''|)(|s' \rangle + |s'' \rangle) = 2 - \frac{1}{2} - \frac{1}{2} = 1, \quad (2.8)$$

となる。これはSOIが強い場合には古典的な寄与に対して-1だけ量子補正が加わることを意味している。以上に示したように、SOIが弱い場合には、波動関数の局在性が強まるため、ゼロ磁場における抵抗の大きさは高磁場のそれよりも大きな値となる（負の磁気抵抗）。一方で、SOIが強い場合にはゼロ磁場における抵抗の大きさは高磁場のそれよりも小さな値となる（正の磁気抵抗）。このような特徴的な磁気抵抗に対する量子補正を、前者に対しては弱局在、後者に対しては弱反局在と呼ぶ。以上が量子干渉効果の現象論的な説明になる。量子干渉効果による磁気伝導度に対する補正のミクロスコピックな理論に基づいた形式は以下の形で表すことができる[2]。

$$\sigma_{HLN} = -\frac{e^2}{2\pi^2\hbar} \left[ \Psi\left(\frac{B_{so}+B_e}{B_z} + \frac{1}{2}\right) - \frac{3}{2}\Psi\left(\frac{\frac{4}{3}B_{so}+B_\phi}{B_z} + \frac{1}{2}\right) + \frac{1}{2}\Psi\left(\frac{B_\phi}{B_z} + \frac{1}{2}\right) \right], \quad (2.9)$$

実際の実験における解析はこの式に基づいて行うこととなる。詳細な解析の方法は次節に述べることとする。最後に、量子干渉効果に着目した測定および解析に関する諸注意を述べたいと思う。初めに、この測定手法の適用範囲である。量子干渉効果は弱局在効果が観測される場合には、量子情報が保たれる $L_\phi^2$ 程度の面積内でスピン緩和が生じていない状況を表している。これはつまり、弱局在効果が観測される場合には $L_{so}$ を定義することができず、もちろん定義できない物理量を評価することはできない。端的に言えば、量子干渉効果に着目した測定によって $L_{so}$ を評価する場合には、必ず弱反局在現象が観測される系でなくてはならない。また、そもそも時間反転対称な散乱経路が定義できなくてはならないのだから、バリスティックな系であってはならない。すなわち、時間反転対称な散乱経路を形成するような弾性散乱が生じるよりも量子情報のデコヒーレンスが早く生じるような場合には、拡散伝導領域の理論を適用できない。以上の事実を踏まえると、量子干渉効果を特徴づける $L_e, L_{so}, L_\phi$ の間には、以下の関係式が成立してはいなくてはならない。

$$L_e < L_{so} < L_\phi, \quad (2.10)$$

続いて、アモルファスなどの結晶の周期性が乱れているような系においては、弱局在、または弱反局在効果とは異なる効果が支配的になる場合があることを述べる。弱(反)局在効果はフェルミ波数 $k_F$ と $L_e$ の関係が

$$k_F L_e \gg 1, \quad (2.11)$$

を満足している場合に観測される。これは $L_e$ がフェルミ波長よりも十分に長いことを担保する条件と理解することができる。つまり、電子の波動関数が試料全体に連続的に広がっている状況を意味する。しかし、式(2.11)の条件が満足されないディスオーダーな系では、電子の波動関数が結晶全体に広がることができず、局在する。このような、不純物ポテンシャル密度が非常に大きい系における波動関数そのものの局在効果を強局在効果(またはアンダーソン局在効果)と呼ぶ。強局在効果が支配的な系では、電気伝導の機構がホッピング伝導(バリアブルレンジホッピングと呼ぶ)によって支配されるようになるため、金属であっても抵抗温度係数が負を示す。強局在の効果は弱反局在効果の理論によって記述できないので、得られたパラメータを用いて式(2.11)の条件が満足されていることを確認する必要がある。

最後に、スピン軌道長 $L_{so}$ とスピン緩和長 $\lambda_{so}$ が同一の物理量ではないことに言及する。弱反局在効果の解析によって得られたスピン軌道長 $L_{so}$ は、後述するSMR測定およびハー

モニクホール測定で得られるスピン緩和長 $\lambda_{so}$ とは異なる物理量であることに注意する必要がある。 $L_{so}$ は図に示したように、2つの電子対の位相差が $2\pi$ となる時の特性長として定義される。その一方で $\lambda_{so}$ は、Drift-Diffusion modelで取り扱うスピン流のような集団的なスピン情報の損失に対応する特性長として定義される。これら2つの量はフェルミ面の形状に対応した特定の比例関係があると考えられているが、その比例係数が実験的に明らかにされているのは等方的なフェルミ面を有する材料系についてのみである[3]。本研究で着目するような5d遷移金属元素はフェルミ面の異方性が高いため、このような議論は適当ではない。そのため、弱反局在効果の解析から得られた $L_{so}$ を定量的に $\lambda_{so}$ と比較したり、解析のためのパラメータとして用いたりすることは正しい取り扱いではないので注意する必要がある。もちろん、 $L_{so}$ と $\lambda_{so}$ の定性的な大小関係は一致するべきである。

## 2.2 量子干渉効果に着目した測定・実験手法

量子干渉効果を観測するためには、試料を数ケルビン程度の極低温まで冷却する必要がある。本研究においてはOxford Instruments社の3軸クライオスタットおよび、超電導転移温度を評価する際には同社の $^3\text{He}$ クライオスタットを用いた。磁気抵抗測定にはLakeshore製のAC抵抗ブリッジを用いた。本研究においては17.1Hzの交流電流を印加して測定を行ったが、試料形状を工夫することによって十分に大きなシグナル強度を確保することができるため、高性能な装置を用いて微小抵抗変化を高精度に測定する必要はなく、単純なDC電流源とマルチメータがあればシグナルは問題なく測定可能である。測定に用いる試料は単純なホールバー形状のもので問題ない。ただし、極端に測定抵抗値が小さい場合にはシグナルが測定系のノイズに埋もれてしまう可能性があるため、比抵抗の小さい材料系にこの測定手法を用いる際は注意が必要である。大きなシグナルを得るためには、試料のアスペクト比は大きい方が望ましい。極低温における測定抵抗値が1 k $\Omega$ 程度であれば十分に高精度な測定が可能である。測定している抵抗値が間違いなく量子干渉効果由来のシグナルであることを担保するため、磁気抵抗測定は複数の異なる温度で行うべきである。両干渉効果由来の磁気抵抗であれば、位相緩和長の温度変化を反映して、温度変化に対して磁気抵抗の大きさが敏感に変化する。一方で古典効果由来の磁気抵抗であればそのような温度依存性は見られない。このことを実験的に示すことで測定データの信頼性が向上する。

試料を測定系に配線し、磁気抵抗測定を行うことによって以下のような典型的なデータを同時に取得することができる。

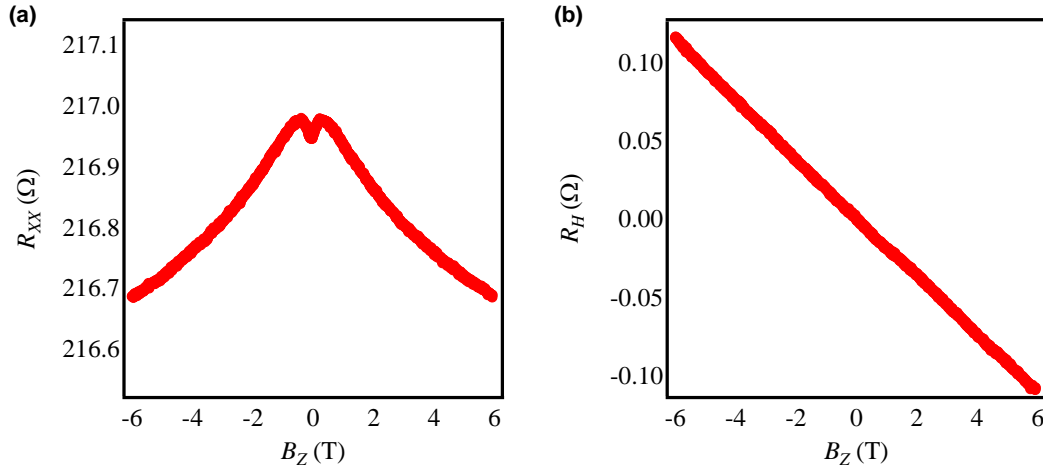


図2.2: 量子干渉効果の測定における典型的な(a)縦磁気抵抗および(b)横磁気抵抗(Hall測定)の結果。データは先行研究[4]に掲載したものである。

図2.2(a)示したデータ[4]はCuをベースとした試料によって得られたものであるから、今回着目しているTa系と比較するとSOIが弱い。そのために、有限の磁場範囲でショルダーと呼ばれる磁気抵抗の極値が観測されている。この極値を示すときの磁場強度が $H_{so}$ に対応する。そのため、TaやPtのようなSOIが強い系では、ショルダーの位置は印加可能な磁場範囲よりも高磁場側になる。

では、実際の解析方法を示してゆく。HLNの式において、生データから計算できる値は $B_e$ であり、これはフィッティングパラメータにする必要はない。よって、まずは $B_e$ を計算するところから始める。 $B_e$ は以下の式で表すことができる。

$$B_e = \frac{\hbar}{4eL_e^2} = \frac{\hbar}{4eD\tau_p}, \quad (2.12)$$

また、 $\tau_p$ および $D$ は以下の式を用いて求めることができる。

$$\tau_p = \frac{m^*}{e} \mu, \quad (2.13)$$

$$D = \frac{v_F^2 \tau_p}{2}, \quad (2.14)$$

ここで、 $m^*$ は有効質量であり、本研究では $m^* = 1$ とした。更に、 $\mu$ および $v_F$ は電子移動度およびフェルミ速度であり、これらは以下の式で与えられる。

$$\mu = \frac{R_{sheet}^{-1}}{en_{sheet}}, \quad (2.15)$$

$$v_F = \frac{\hbar \sqrt{2\pi n_{sheet}}}{m^*}, \quad (2.16)$$

これにより、実験によって評価可能なパラメータに必要な物理定数を紐づけることができた。 $R_{sheet}^{-1}$ を縦抵抗測定から、 $n_{sheet}$ をHall測定から求めることにより、これらのパラメータを実験的に評価できるため、最終的に $B_e$ を計算し、フィッティングパラメータから外すことができる。このようにして評価した理論式を用いて、図 2.2 に示したような実験データに対してフィッティングを行うことでフィッティングパラメータとして $B_{SO}$ および $B_\phi$ を得ることができる。これらのパラメータは

$$L_{SO,\phi} = \sqrt{\frac{\hbar}{4eB_{SO,\phi}}}, \quad (2.17)$$

を用いて特性長に変換することができる。更に、得られた $L_{SO}$ を用いて、以下の式によりスピン緩和時間 $\tau_{SO}$ を計算することができる。

$$\tau_{SO} = \frac{L_{SO}^2}{D}, \quad (2.18)$$

得られたスピン緩和時間 $\tau_{SO}$ と拡散係数 $D$ の相関関係を議論することにより、スピン緩和機構を明らかにすることができる。本研究では、スピン緩和機構として、金属で通常観測される Elliott-Yafet(EY)機構[5,6]と、半導体 2 次元電子ガス中で支配的な D'yakonov-Perel' (DP)機構[7]の 2 つのスピン緩和機構を仮定する。これら 2 つの異なるスピン緩和機構のスピン緩和の様子の違いを図 2. に示した。EY 機構が支配的な系では、局在不純物やフォノンによる散乱がスピン緩和を生じるが、DP 機構が支配的な系では SOI に由来する有効磁場によってスピンの緩和する。EY 機構が支配的な系においては $\tau_{SO} \propto D$ となるが、DP 機構が支配的な系では $\tau_{SO} \propto D^{-1}$ となる。以上のような解析によってスピン緩和機構を議論することが可能である。



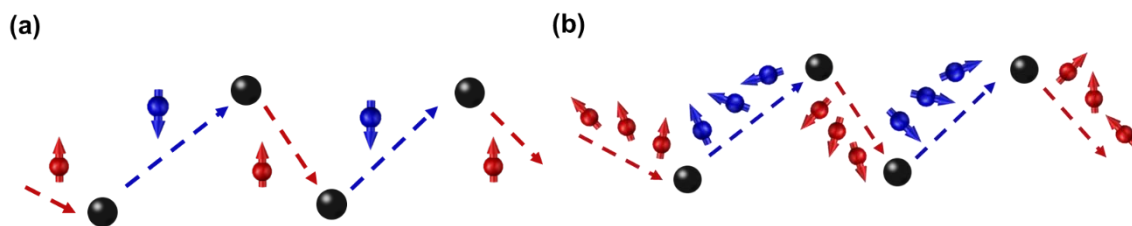


図 2.3 : (a)EY 機構および(b)DP 機構によるスピンの緩和の様子を表した模式図。

## 2.3 スピンホール磁気抵抗効果に着目した測定

スピンホール磁気抵抗 (spin Hall magnetoresistance : SMR) [8,9] は、SHE と ISHE が同時に起こることによって、SHE 由来の磁気抵抗変化が生じる現象である。はじめに SMR の現象論について説明する。SHE の強い非磁性金属と強磁性体 (ferromagnet : FM) のヘテロ構造 (HM/FM 構造) を考えよう。HM 層では第 1 章で言及したように、試料面内方向に電流を印加すると SHE により試料面直方向にスピン流が生じる。このスピン流のスピン偏極方向は電流とスピン流の外積方向となるという事は既に述べたとおりである。ここで、このスピン流の HM/FM 界面における振る舞いを考える。もし FM の磁化の向きがスピン流のスピン偏極方向と一致していた場合、スピン流のもつスピン角運動量は FM 層に受け渡すことができないため、スピン流は HM/FM 界面で反射される。HM/FM 界面で反射されたスピン流は ISHE により電流に変換される。このスピン流の反射と ISHE によって余剰に電流が発生する効果は磁気抵抗を減少させるような効果として実験的に観測される。一方で、FM の磁化の向きがスピン流のスピン偏極方向と一致していなかった場合、スピン流のもつスピン角運動量は FM 層に受け渡すことが可能となる。このとき、HM/FM 界面で反射されるスピン流は FM の磁化の向きがスピン流のスピン偏極方向と一致している場合と比較して減少し、FM 層に吸収されるスピン流の成分が相対的に増加する。このようなスピン流のスピン偏極方向に依存した HM/FM 界面でのスピン吸収効率の異方性に由来する磁気抵抗変化をもとに  $\text{SHA}$  や  $\lambda_s$  を評価するのが SMR 測定である。このような SMR の描像を以下の図 2.4 に示した。SMR の手法は他の FM/NM 系薄膜における SHA および  $\lambda_s$  の評価手法に対して比較的簡便な装置を用いて測定を行うことができ、解析手法もシンプルである。また、強磁性絶縁体の磁化方向を電氣的に知ることができる手法としても知られている。しかし、この手法では FL field を評価することができない点や界面のスピンミキシングコンダクタンスの値が外部パラメータになってしまう点、更にマグノン由来の磁気抵抗 [10] や Hanle 効果由来の磁気抵抗 [11] など、着目している効果とは異なる起源の磁気抵抗を同時に観測してしまう可能性があるため、SMR 以外の効果との切り分けを正確に行う手法を確立するための研究が今後必要とされる。

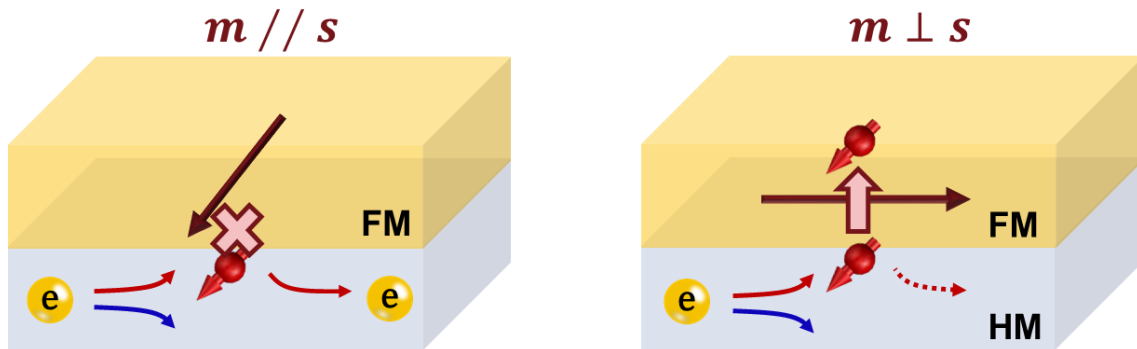


図 2.4: スピンホール磁気抵抗効果の概念図。左図、右図は、それぞれ磁化方向がスピンの偏極方向と平行な場合と、平行ではない場合を表している。

ここで、SMR の理論的な解釈を先行研究 [12] を基に議論する。はじめに、座標系の定義を以下の図 2.5 に示す。

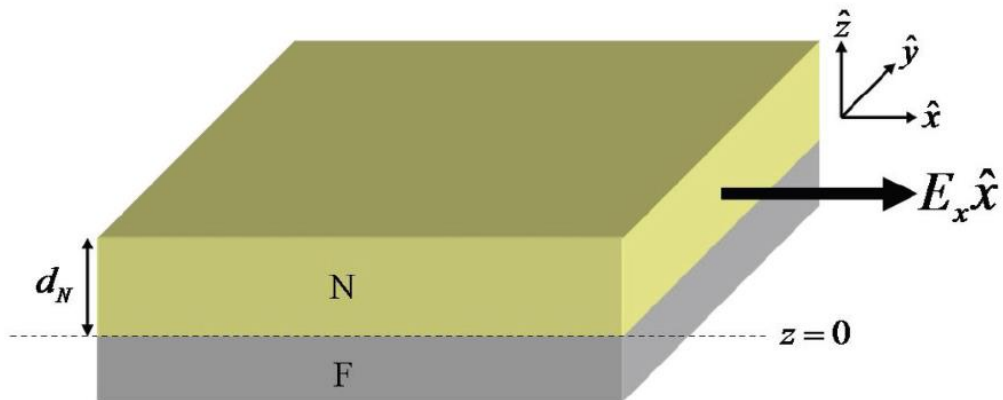


図 2.5: 本節の議論で取り扱う系の座標系の定義 (参考文献[12] Fig. 1 (a)より引用)

$\hat{x}, \hat{y}, \hat{z}$  は各方向に対応する単位ベクトルである。このような非磁性体/強磁性体のヘテロ構造に対して  $x$  方向に電場  $E_x$  が印加されている状況を考える。また、膜面垂直方向を  $z$  方向とし、非磁性体/強磁性体界面の  $z$  座標を  $z=0$  とする。また、非磁性体の膜厚を  $d_N$  と表すこととする。SOI の強い Ta などの重金属中における Ohm の法則は、SHE と ISHE を考慮して以下のような形式で表すことができる。

$$\begin{pmatrix} \mathbf{j}_c \\ \mathbf{j}_{sx} \\ \mathbf{j}_{sy} \\ \mathbf{j}_{sz} \end{pmatrix} = \sigma \begin{pmatrix} 1 & \theta_{SH} \hat{\mathbf{x}} \times & \theta_{SH} \hat{\mathbf{y}} \times & \theta_{SH} \hat{\mathbf{z}} \times \\ \theta_{SH} \hat{\mathbf{x}} \times & 1 & 0 & 0 \\ \theta_{SH} \hat{\mathbf{y}} \times & 0 & 1 & 0 \\ \theta_{SH} \hat{\mathbf{z}} \times & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} -\nabla \frac{\mu_0}{e} \\ -\nabla \frac{\mu_s}{2e} \cdot \hat{\mathbf{x}} \\ -\nabla \frac{\mu_s}{2e} \cdot \hat{\mathbf{y}} \\ -\nabla \frac{\mu_s}{2e} \cdot \hat{\mathbf{z}} \end{pmatrix}, \quad (2.19)$$

ここで、 $\mathbf{j}_{sx}, \mathbf{j}_{sy}, \mathbf{j}_{sz}$  は x, y, z 方向のスピン流を表す。また、電子の電気化学ポテンシャル  $\mu_0$  を用いてスピン蓄積を以下のように表す。

$$\boldsymbol{\mu}_s = \begin{pmatrix} \mu_{sx} \\ \mu_{sy} \\ \mu_{sz} \end{pmatrix} - \mu_0 \hat{\mathbf{1}}, \quad (2.20)$$

このスピン蓄積が  $\boldsymbol{\mu}_s$  従うスピン拡散方程式

$$\nabla^2 \boldsymbol{\mu}_s = \frac{\boldsymbol{\mu}_s}{\lambda_s^2}, \quad (2.21)$$

を z 方向について解くことにより、z の関数としてスピン蓄積  $\boldsymbol{\mu}_s(z)$  を求めることを考える。(2.21) のスピン拡散方程式の一般解は

$$\boldsymbol{\mu}_s(z) = \mathbf{A} e^{-\frac{z}{\lambda_s}} + \mathbf{B} e^{\frac{z}{\lambda_s}}, \quad (2.22)$$

で与えられる。この未知係数  $\mathbf{A}, \mathbf{B}$  を、スピン流の境界条件を課すことによって求める。z 方向のスピン流  $\mathbf{j}_{sz}(z)$  は、(2.19) 式を用いて、

$$\begin{aligned} \mathbf{j}_{sz}(z) &= \frac{\sigma}{e} \theta_{SH} \hat{\mathbf{z}} \times \left( -\nabla \frac{\mu_0}{e} \right) - \frac{\sigma}{2e} \frac{\partial \boldsymbol{\mu}_s}{\partial z} \\ &= \theta_{SH} \frac{\sigma}{e} \left( -\frac{\partial \mu_0}{\partial x} \cdot \hat{\mathbf{y}} - \frac{\partial \mu_0}{\partial y} \cdot \hat{\mathbf{x}} \right) - \frac{\sigma}{2e} \frac{\partial \boldsymbol{\mu}_s}{\partial z}, \end{aligned} \quad (2.23)$$

電場が x 方向にのみ印加されていることに注意して、 $E_x = -\frac{1}{e} \frac{\partial \mu_0}{\partial x}$  とし、 $j_{s0}^{SH} = \theta_{SH} \sigma E_x$  と置き換えると、

$$\mathbf{j}_{sz}(z) = -\frac{\sigma}{2e} \frac{\partial \boldsymbol{\mu}_s}{\partial z} - j_{s0}^{SH} \hat{\mathbf{y}}, \quad (2.24)$$

が得られる。NM/FM 界面のスピンの流  $\mathbf{j}_s^F(\hat{\mathbf{m}})$  は磁化の単位ベクトル  $\hat{\mathbf{m}} = (m_x, m_y, m_z)$  の関数であり、界面でのスピン蓄積とスピンミキシングコンダクタンス  $G_{\uparrow\downarrow} = G_r + iG_i$  に依存し、

$$e\mathbf{j}_s^F(\hat{\mathbf{m}}) = G_r \hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{m}} \times \boldsymbol{\mu}_s + G_i \hat{\mathbf{m}} \times \boldsymbol{\mu}_s, \quad (2.25)$$

で与えられる。ここで、 $\text{Re}[G_{\uparrow\downarrow}] = G_r$ ,  $\text{Im}[G_{\uparrow\downarrow}] = G_i$  である。NM/FM 積層構造においては、 $\mathbf{j}_{sz}(0) = \mathbf{j}_s^F(\hat{\mathbf{m}})$ ,  $\mathbf{j}_{sz}(d_N) = 0$  の境界条件が与えられる。(2.22), (2.24) を用いてこれらの境界条件のもと、(2.22) の未知係数  $\mathbf{A}, \mathbf{B}$  を求めると、

$$\mathbf{A} = \frac{2e\lambda_s}{\sigma} \left\{ j_{s0}^{SH} \hat{\mathbf{y}} + \mathbf{j}_s^F(\hat{\mathbf{m}}) + \frac{1}{2\sinh \frac{d_N}{\lambda_s}} \left[ \left( j_{s0}^{SH} \hat{\mathbf{y}} + \mathbf{j}_s^F(\hat{\mathbf{m}}) \right) e^{-\frac{d_N}{\lambda_s}} - j_{s0}^{SH} \hat{\mathbf{y}} \right] \right\}, \quad (2.26)$$

$$\mathbf{B} = \frac{e\lambda_s}{\sigma} \left\{ \frac{1}{\sinh \frac{d_N}{\lambda_s}} \left[ \left( j_{s0}^{SH} \hat{\mathbf{y}} + \mathbf{j}_s^F(\hat{\mathbf{m}}) \right) e^{-\frac{d_N}{\lambda_s}} - j_{s0}^{SH} \hat{\mathbf{y}} \right] \right\}, \quad (2.26)$$

が得られる。ここで得られた  $\mathbf{A}, \mathbf{B}$  を式(2.22)に代入し、整理する。

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\mu}_s(z) &= \frac{2e\lambda_s}{\sigma} \left\{ j_{s0}^{SH} \hat{\mathbf{y}} + \mathbf{j}_s^F(\hat{\mathbf{m}}) + \frac{1}{2\sinh \frac{d_N}{\lambda_s}} \left[ \left( j_{s0}^{SH} \hat{\mathbf{y}} + \mathbf{j}_s^F(\hat{\mathbf{m}}) \right) e^{-\frac{d_N}{\lambda_s}} - j_{s0}^{SH} \hat{\mathbf{y}} \right] \right\} e^{-\frac{z}{\lambda_s}} \\ &\quad + \frac{2e\lambda_s}{\sigma} \left\{ j_{s0}^{SH} \hat{\mathbf{y}} + \mathbf{j}_s^F(\hat{\mathbf{m}}) + \frac{1}{2\sinh \frac{d_N}{\lambda_s}} \left[ \left( j_{s0}^{SH} \hat{\mathbf{y}} + \mathbf{j}_s^F(\hat{\mathbf{m}}) \right) e^{-\frac{d_N}{\lambda_s}} - j_{s0}^{SH} \hat{\mathbf{y}} \right] \right\} e^{\frac{z}{\lambda_s}} \\ &= \frac{2e\lambda_s}{\sigma} \left[ \frac{\left( j_{s0}^{SH} \hat{\mathbf{y}} + \mathbf{j}_s^F(\hat{\mathbf{m}}) \right) \left\{ e^{-\frac{z}{\lambda_s}} \sinh \frac{d_N}{\lambda_s} + e^{-\frac{d_N}{\lambda_s}} \cosh \frac{d_N}{\lambda_s} \right\} - j_{s0}^{SH} \hat{\mathbf{y}} \cosh \frac{z}{\lambda_s}}{\sinh \frac{d_N}{\lambda_s}} \right] \\ &= \frac{2e\lambda_s}{\sigma} \left[ \frac{\left( j_{s0}^{SH} \hat{\mathbf{y}} + \mathbf{j}_s^F(\hat{\mathbf{m}}) \right) \cosh \frac{z - d_N}{\lambda_s} - j_{s0}^{SH} \hat{\mathbf{y}} \cosh \frac{z}{\lambda_s}}{\sinh \frac{d_N}{\lambda_s}} \right] \end{aligned}$$

$$= -\hat{\mathbf{y}}\left(\frac{2e\lambda_s}{\sigma}j_{s0}^{SH}\right)\frac{\cosh\frac{z}{\lambda_s}-\cosh\frac{z-d_N}{\lambda_s}}{\sinh\frac{d_N}{\lambda_s}}+\frac{2e\lambda_s}{\sigma}\mathbf{j}_s^F(\hat{\mathbf{m}})\frac{\cosh\frac{z-d_N}{\lambda_s}}{\sinh\frac{d_N}{\lambda_s}}, \quad (2.27)$$

が得られる。ここで、(2.27)の第1項の双曲線関数を含む部分に関して以下の変形を行う。

$$\begin{aligned} & \frac{\cosh\frac{z}{\lambda_s}-\cosh\frac{z-d_N}{\lambda_s}}{\sinh\frac{d_N}{\lambda_s}} \\ &= \frac{\left(e^{\frac{z}{\lambda_s}}e^{-\frac{d_N}{2\lambda_s}}-e^{-\frac{z}{\lambda_s}}e^{\frac{d_N}{2\lambda_s}}\right)\left(e^{\frac{d_N}{2\lambda_s}}-e^{-\frac{d_N}{2\lambda_s}}\right)}{e^{\frac{d_N}{\lambda_s}}-e^{-\frac{d_N}{\lambda_s}}} \\ &= \frac{e^{\frac{z}{\lambda_s}}e^{-\frac{d_N}{2\lambda_s}}-e^{-\frac{z}{\lambda_s}}e^{\frac{d_N}{2\lambda_s}}}{e^{\frac{d_N}{2\lambda_s}}+e^{-\frac{d_N}{2\lambda_s}}} \\ &= \frac{\sinh\frac{2z-d_N}{2\lambda_s}}{\cosh\frac{d_N}{2\lambda_s}} \\ &= \tanh\left(\frac{d_N}{2\lambda_s}\right)\frac{\sinh\frac{2z-d_N}{2\lambda_s}}{\sinh\frac{d_N}{2\lambda_s}}, \end{aligned} \quad (2.28)$$

ここで、

$$\mu_s^0 \equiv |\boldsymbol{\mu}_s(0)| = \frac{2e\lambda_s}{\sigma}j_{s0}^{SH}\tanh\left(\frac{d_N}{2\lambda_s}\right), \quad (2.29)$$

を導入すると、(2.27)は更に簡潔に表現することができ、

$$\boldsymbol{\mu}_s(z) = -\hat{\mathbf{y}}\mu_s^0 \frac{\sinh \frac{2z-d_N}{2\lambda_s}}{\sinh \frac{d_N}{2\lambda_s}} + \frac{2e\lambda_s}{\sigma} \mathbf{J}_s^F(\hat{\mathbf{m}}) \frac{\cosh \frac{z-d_N}{\lambda_s}}{\sinh \frac{d_N}{\lambda_s}}, \quad (2.30)$$

が得られる。これにより、z 方向のスピン蓄積の一般的な表式が明らかとなった。続いて、z=0 におけるスピン蓄積 $\boldsymbol{\mu}_s(0)$ を求めてゆく。(2.25)を(2.30)に代入し z=0 とすることで、

$$\boldsymbol{\mu}_s(0) = \hat{\mathbf{y}}\mu_s^0 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} [G_r\{\hat{\mathbf{m}}(\hat{\mathbf{m}} \cdot \boldsymbol{\mu}_s(0)) - \boldsymbol{\mu}_s(0)\} + G_i(\hat{\mathbf{m}} \times \boldsymbol{\mu}_s(0))] \coth \frac{d_N}{\lambda_s}, \quad (2.31)$$

ここで、ベクトル三重積の公式より  $\hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{m}} \times \boldsymbol{\mu}_s(0) = \hat{\mathbf{m}}(\hat{\mathbf{m}} \cdot \boldsymbol{\mu}_s(0)) - (\hat{\mathbf{m}} \cdot \hat{\mathbf{m}})\boldsymbol{\mu}_s(0)$ を得た。式(2.31)に左から $\hat{\mathbf{m}}$ を内積および外積することによって、(2.31)内にある $\hat{\mathbf{m}} \cdot \boldsymbol{\mu}_s(0)$ および $\hat{\mathbf{m}} \times \boldsymbol{\mu}_s(0)$ の部分の具体的な形を明らかにすることができる。

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{m}} \cdot \boldsymbol{\mu}_s(0) &= m_y \mu_s^0, \\ \hat{\mathbf{m}} \times \boldsymbol{\mu}_s(0) &= \hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{y}}\mu_s^0 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} [-G_r(\hat{\mathbf{m}} \times \boldsymbol{\mu}_s(0)) + G_i(\hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{m}} \times \boldsymbol{\mu}_s(0))] \coth \frac{d_N}{\lambda_s} \end{aligned} \quad (2.32)$$

$\hat{\mathbf{m}} \times \boldsymbol{\mu}_s(0)$ の項をまとめ、(2.32)を用いることにより、

$$\hat{\mathbf{m}} \times \boldsymbol{\mu}_s(0) = \mu_s^0 \frac{\sigma(\hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{y}}) + \hat{\mathbf{m}} m_y 2\lambda_s G_i \coth \frac{d_N}{\lambda_s}}{\sigma + 2\lambda_s G_r \coth \frac{d_N}{\lambda_s}} - \boldsymbol{\mu}_s(0) \frac{2\lambda_s G_i \coth \frac{d_N}{\lambda_s}}{\sigma + 2\lambda_s G_r \coth \frac{d_N}{\lambda_s}}, \quad (2.33)$$

が得られる。(2.32)と(2.33)を(2.31)に代入して $\boldsymbol{\mu}_s(0)$ に関して解くことにより、

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\mu}_s(0) &= \hat{\mathbf{y}}\mu_s^0 \frac{1 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_r \coth \frac{d_N}{\lambda_s}}{\left(1 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_r \coth \frac{d_N}{\lambda_s}\right)^2 + \left(\frac{2\lambda_s}{\sigma} G_i \coth \frac{d_N}{\lambda_s}\right)^2} \\ &+ \hat{\mathbf{m}} m_y \mu_s^0 \frac{\frac{2\lambda_s}{\sigma} G_r \coth \frac{d_N}{\lambda_s} \left(1 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_r \coth \frac{d_N}{\lambda_s}\right) + \left(\frac{2\lambda_s}{\sigma} G_i \coth \frac{d_N}{\lambda_s}\right)^2}{\left(1 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_r \coth \frac{d_N}{\lambda_s}\right)^2 + \left(\frac{2\lambda_s}{\sigma} G_i \coth \frac{d_N}{\lambda_s}\right)^2} \\ &+ (\hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{y}})\mu_s^0 \frac{\frac{2\lambda_s}{\sigma} G_i \coth \frac{d_N}{\lambda_s}}{\left(1 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_r \coth \frac{d_N}{\lambda_s}\right)^2 + \left(\frac{2\lambda_s}{\sigma} G_i \coth \frac{d_N}{\lambda_s}\right)^2}, \end{aligned} \quad (2.34)$$

(2.34)で得られた $\boldsymbol{\mu}_s(0)$ を、 $G_{\uparrow\downarrow}$ を用いた形式で書き換えることを考える。ここで、

$$\frac{G_{\uparrow\downarrow}}{1 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_{\uparrow\downarrow} \coth \frac{d_N}{\lambda_s}} = \frac{\left\{ G_r \left( 1 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_r \coth \frac{d_N}{\lambda_s} \right) + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_i \coth \frac{d_N}{\lambda_s} \right\} + i G_i}{\left( 1 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_r \coth \frac{d_N}{\lambda_s} \right)^2 + \left( \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_i \coth \frac{d_N}{\lambda_s} \right)^2}, \quad (2.35)$$

(2.35)の左辺を実部と虚部に分離し、右辺のように変形すると、(2.34)と対応するような成分が得られることがわかる。(2.35)の関係を用いて(2.34)を簡略化すると、

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\mu}_s(0) = & \hat{\mathbf{y}} \mu_s^0 \frac{1 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_r \coth \frac{d_N}{\lambda_s}}{\left( 1 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_r \coth \frac{d_N}{\lambda_s} \right)^2 + \left( \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_i \coth \frac{d_N}{\lambda_s} \right)^2} \\ & + \frac{2\lambda_s}{\sigma} \coth \frac{d_N}{\lambda_s} \left\{ \hat{\mathbf{m}} m_y \mu_s^0 \operatorname{Re} \left[ \frac{G_{\uparrow\downarrow}}{1 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_{\uparrow\downarrow} \coth \frac{d_N}{\lambda_s}} \right] + (\hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{y}}) \mu_s^0 \operatorname{Im} \left[ \frac{G_{\uparrow\downarrow}}{1 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_{\uparrow\downarrow} \coth \frac{d_N}{\lambda_s}} \right] \right\}, \quad (2.36) \end{aligned}$$

ここでベクトル三重積の公式を用いて、 $\hat{\mathbf{m}} m_y = \hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{y}} + \hat{\mathbf{y}}$ を得ることができるので、これを(2.36)に代入し、整理する。

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\mu}_s(0) = & \hat{\mathbf{y}} \mu_s^0 \left\{ \frac{1 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_r \coth \frac{d_N}{\lambda_s}}{\left( 1 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_r \coth \frac{d_N}{\lambda_s} \right)^2 + \left( \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_i \coth \frac{d_N}{\lambda_s} \right)^2} \right. \\ & + \frac{2\lambda_s}{\sigma} \coth \frac{d_N}{\lambda_s} \operatorname{Re} \left[ \frac{G_{\uparrow\downarrow}}{1 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_{\uparrow\downarrow} \coth \frac{d_N}{\lambda_s}} \right] \left. \right\} \\ & + \frac{2\lambda_s}{\sigma} \coth \frac{d_N}{\lambda_s} \left\{ (\hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{y}}) \mu_s^0 \operatorname{Re} \left[ \frac{G_{\uparrow\downarrow}}{1 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_{\uparrow\downarrow} \coth \frac{d_N}{\lambda_s}} \right] \right. \\ & + (\hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{y}}) \mu_s^0 \operatorname{Im} \left[ \frac{G_{\uparrow\downarrow}}{1 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_{\uparrow\downarrow} \coth \frac{d_N}{\lambda_s}} \right] \left. \right\}, \quad (2.37) \end{aligned}$$

式(2.37)中の $\hat{\mathbf{y}} \mu_s^0$ の係数となっている{ }内は計算すると1となることがわかる。したがって、

$$\begin{aligned}\mu_s(0) = \hat{\mathbf{y}}\mu_s^0 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} \left\{ (\hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{y}})\mu_s^0 \operatorname{Re} \left[ \frac{G_{\uparrow\downarrow}}{1 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_{\uparrow\downarrow} \coth \frac{d_N}{\lambda_s}} \right] \right. \\ \left. + (\hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{y}})\mu_s^0 \operatorname{Im} \left[ \frac{G_{\uparrow\downarrow}}{1 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_{\uparrow\downarrow} \coth \frac{d_N}{\lambda_s}} \right] \right\} \coth \frac{d_N}{\lambda_s},\end{aligned}\quad (2.38)$$

が得られる。式(2.38)と(2.31)を比較すると、

$$e\mathbf{j}_s^F(\hat{\mathbf{m}}) = (\hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{y}})\mu_s^0 \operatorname{Re} \left[ \frac{G_{\uparrow\downarrow}}{1 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_{\uparrow\downarrow} \coth \frac{d_N}{\lambda_s}} \right] + (\hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{y}})\mu_s^0 \operatorname{Im} \left[ \frac{G_{\uparrow\downarrow}}{1 + \frac{2\lambda_s}{\sigma} G_{\uparrow\downarrow} \coth \frac{d_N}{\lambda_s}} \right], \quad (2.39)$$

が得られる。これを(2.30)に代入すると、

$$\begin{aligned}\frac{\mu_s(z)}{\mu_s^0} = -\hat{\mathbf{y}} \frac{\sinh \frac{2z - d_N}{2\lambda_s}}{\sinh \frac{d_N}{2\lambda_s}} \\ + [(\hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{y}})\operatorname{Re} + (\hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{y}})\operatorname{Im}] \frac{2\lambda_s G_{\uparrow\downarrow}}{\sigma + 2\lambda_s G_{\uparrow\downarrow} \coth \frac{d_N}{\lambda_s}} \frac{\cosh \frac{z - d_N}{\lambda_s}}{\sinh \frac{d_N}{\lambda_s}},\end{aligned}\quad (2.40)$$

これを(2.24)に代入して $\mathbf{j}_{sz}(z)$ を求めると、

$$\begin{aligned}\frac{\mathbf{j}_{sz}(z)}{j_{s0}^{SH}} = \hat{\mathbf{y}} \frac{\cosh \frac{2z - d_N}{2\lambda_s} - \cosh \frac{d_N}{2\lambda_s}}{\cosh \frac{d_N}{2\lambda_s}} \\ - [(\hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{y}})\operatorname{Re} + (\hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{y}})\operatorname{Im}] \frac{2\lambda_s G_{\uparrow\downarrow} \tanh \frac{d_N}{2\lambda_s}}{\sigma + 2\lambda_s G_{\uparrow\downarrow} \coth \frac{d_N}{\lambda_s}} \frac{\sinh \frac{z - d_N}{\lambda_s}}{\sinh \frac{d_N}{\lambda_s}},\end{aligned}\quad (2.41)$$

が得られる。ここで、(2.19)に示した関係を使うと、x方向に生じる電流 $\mathbf{j}_{c, long}$ は、

$$\mathbf{j}_{c, long} = \hat{\mathbf{x}} \cdot \left( \sigma \mathbf{E} + \theta_{SH} \hat{\mathbf{z}} \times \left( -\frac{\sigma}{2e} \frac{\partial \mu_s(z)}{\partial z} \right) \right), \quad (2.42)$$



であり、(2.24)および(2.41)を用いて、 $j_c^0 = \sigma E_x$ とすると、

$$\frac{j_{c, \text{long}}}{j_c^0} = 1 + \theta_{SH}^2 \left[ \frac{\cosh \frac{2z - d_N}{2\lambda_s}}{\cosh \frac{d_N}{2\lambda_s}} + (1 - m_y^2) \operatorname{Re} \left[ \frac{2\lambda_s G_{\uparrow\downarrow} \tanh \frac{d_N}{2\lambda_s}}{\sigma + 2\lambda_s G_{\uparrow\downarrow} \coth \frac{d_N}{\lambda_s}} \frac{\sinh \frac{z - d_N}{\lambda_s}}{\sinh \frac{d_N}{\lambda_s}} \right] \right], \quad (2.42)$$

式(2.42)を  $z$  方向に平均すると、

$$\frac{\int_0^{d_N} dz \frac{j_{c, \text{long}}}{j_c^0}}{\int_0^{d_N} dz} = 1 + \theta_{SH}^2 \left[ \frac{2\lambda}{d_N} \tanh \frac{d_N}{2\lambda_s} + (1 - m_y^2) \frac{\lambda_s}{d_N} \operatorname{Re} \left[ \frac{2\lambda_s G_{\uparrow\downarrow} \tanh \frac{d_N}{2\lambda_s}}{\sigma + 2\lambda_s G_{\uparrow\downarrow} \coth \frac{d_N}{\lambda_s}} \right] \right], \quad (2.43)$$

ここで、双曲線関数の公式  $\cosh^2 x - \sinh^2 x = 1$ ,  $\sinh 2x = 2 \sinh x \cosh x$  を用いた。式(2.43)の左辺をを  $\overline{j_{c, \text{long}}}/j_c^0$  と表すこととすると、対角比抵抗  $\rho_{\text{long}}$  は

$$\begin{aligned} \rho_{\text{long}} &= \left( \frac{\overline{j_{c, \text{long}}}}{j_c^0} \right)^{-1} \\ &= \frac{1}{\sigma \left( 1 + \theta_{SH}^2 \left[ \frac{2\lambda}{d_N} \tanh \frac{d_N}{2\lambda_s} + (1 - m_y^2) \frac{\lambda_s}{d_N} \operatorname{Re} \left[ \frac{2\lambda_s G_{\uparrow\downarrow} \tanh \frac{d_N}{2\lambda_s}}{\sigma + 2\lambda_s G_{\uparrow\downarrow} \coth \frac{d_N}{\lambda_s}} \right] \right] \right)}, \quad (2.44) \end{aligned}$$

と表すことができる。近似式  $1/(1+x) \approx 1-x$  を用いて、

$$\rho_{\text{long}} \approx \rho \left\{ 1 - \theta_{SH}^2 \frac{2\lambda}{d_N} \tanh \frac{d_N}{2\lambda_s} + (1 - m_y^2) \theta_{SH}^2 \frac{\lambda_s}{d_N} \operatorname{Re} \left[ \frac{2\lambda_s G_{\uparrow\downarrow} \tanh \frac{d_N}{2\lambda_s}}{\sigma + 2\lambda_s G_{\uparrow\downarrow} \coth \frac{d_N}{\lambda_s}} \right] \right\}, \quad (2.45)$$

$$\frac{\Delta \rho_0}{\rho} = -\theta_{SH}^2 \frac{2\lambda}{d_N} \tanh \frac{d_N}{2\lambda_s}, \quad (2.46)$$

$$\frac{\Delta \rho_1}{\rho} = (1 - m_y^2) \theta_{SH}^2 \frac{\lambda_s}{d_N} \operatorname{Re} \left[ \frac{2\lambda_s G_{\uparrow\downarrow} \tanh \frac{d_N}{2\lambda_s}}{\sigma + 2\lambda_s G_{\uparrow\downarrow} \coth \frac{d_N}{\lambda_s}} \right], \quad (2.47)$$

と定義すると、 $\rho_{long} \approx \rho + \Delta\rho_0 + \Delta\rho_1(1 - m_y^2)$ という形で、磁化の y 方向成分に依存した磁気抵抗変化を理論的に表すことができ、SMR の描像がスピンドリフト拡散モデルから導くことができた。

続いて実験方法を述べる。本研究で行った SMR 測定に使用した素子の積層構造は HM/FM 構造である。この構造の素子をホールバー形状に加工し、磁気抵抗測定を行うことで SMR を評価することができる。本研究では2つの手法で磁気抵抗測定を行った。1つ目の測定手法は、試料の抵抗値を測定しながら外部磁場をスイープする手法である。この手法では、装置の回転機構や三軸マグネットなどの複雑な機構を必要としないので比較的容易に測定が可能である。しかし、この測定手法は特に結晶性の強磁性体を使用している場合には、面内に磁化の残留が起こる場合があり、必ずしも正確なデータを測定できない可能性がある。2つ目の測定手法は、強磁性体の異方性磁場よりも十分大きな磁場を印加しながら試料を回転する、または三軸マグネットを用いて強磁場を印加しながら磁場方向を変化させる手法である。この測定では、複雑な装置が必要な代わりにドメインの影響を考慮する必要が無く、正確なデータを得ることができる。本研究ではこれら両方の手法を適用し、ほぼ同様なデータが得られることを確認している。

得られた SMR のデータをゼロ磁場における試料抵抗値で割ることによって SMR 比を評価することができる。SMR 比は以下の式で定義される。

$$\text{SMR}(\%) = \frac{\Delta R_{\text{SMR}}}{R_0} \times 100 \quad (2.48)$$

この SMR 比を非磁性層の膜厚に対してプロットし、これに対して強磁性体中のスピン緩和の寄与を取り込んだ以下の理論式[13]を用いてフィッティングすることによって、SHA と  $\lambda_{Ta}$  を評価することができる。

$$\frac{\Delta R_{\text{SMR}}}{R_0} = -|\theta_{\text{SH}}^{\text{smr}}|^2 \frac{\lambda_{\text{Ta}}}{d_{\text{Ta}}} \frac{\tanh^2\left(\frac{d_{\text{Ta}}}{2\lambda_{\text{Ta}}}\right)}{1 + \xi} \left[ \frac{g_R}{1 + g_R \coth\left(\frac{d_{\text{Ta}}}{\lambda_{\text{Ta}}}\right)} - \frac{g_F}{1 - g_F \coth\left(\frac{d_{\text{Ta}}}{\lambda_{\text{Ta}}}\right)} \right], \quad (2.49)$$

ここで、

$$\xi = \frac{\rho_{\text{Ta}} d_{\text{FM}}}{\rho_{\text{FM}} d_{\text{Ta}}}, \quad (2.50)$$

$$g_R = 2\rho_{\text{Ta}}\lambda_{\text{Ta}}\text{Re}[G_{\text{MIX}}], \quad (2.51)$$

$$g_F = \frac{(1 - P^2)\rho_{\text{Ta}}\lambda_{\text{Ta}}}{\rho_{\text{FM}}\lambda_{\text{FM}}\coth\left(\frac{d_{\text{FM}}}{\lambda_{\text{FM}}}\right)}, \quad (2.52)$$

である。

## 2.3 ハーモニックホール測定

ハーモニックホール測定は、異常ホール効果および面内ホール効果の第二高調波成分に着目し、DL field および FL field を定量評価する手法である。この測定手法では、ロックインアンプが測定に必須であり、試料の回転機構も必要となるが、DL field や FL field を高精度に評価することが可能である。また、SOT の評価方法として一般的な STT-FMR や Spin Pumping などの高周波(GHz 帯)を用いた測定と比較して、低周波の交流電圧(10Hz 程度)で測定することができるため、予期しない整流効果が検出信号に重畳することが無い。また、磁化方向に依らずに SOT を評価することが可能なので、様々な系に広く適用可能である。更に、ハーモニックホール測定は面直磁化のサンプルの場合は磁化反転の実験と、面内磁化のサンプルに対しては SMR 測定と全く同一のサンプルで行うことができるため、これらと相補的な実験が可能であり、測定データの正確性をより向上することが可能である。ハーモニックホール測定は異常ホール効果および面内ホール効果の信号をロックインアンプで検出し、信号の主成分(1<sup>st</sup> harmonic signal :  $V_\omega$ )と第二高調波成分(2<sup>nd</sup> harmonic signal :  $V_{2\omega}$ )を別々に検出し、それらを用いて DL field および FL field を見積もる手法である。 $V_\omega$ は外部磁場中の磁化の平衡角に関する情報を、 $V_{2\omega}$ は磁化の平衡角から有効磁場によって磁化がどれだけ振れたかを示す量である。このことから、 $V_{2\omega}$ の測定は SOT を評価する上で特に重要な意味を持っている。この測定に関する磁化のあらゆる角度に対する SOT の振る舞いは、既に K. Garello らによって明らかになっている[14]。本節では参考文献[14]を基に、ハーモニックホール測定の原理をまとめる。

初めに、ハーモニックホール測定の基本的な概念に関して述べる。単純な非磁性/強磁性体ヘテロ構造をホールクロス素子に加工し、これに対して低周波の AC 電流を印加した状態でホール効果を検出する系を想定する。このとき、印加した AC 電流を  $I(t) = I_0 \sin \omega t$  と表すこととしよう。ここで測定される Hall 電圧は  $V_H(t) = R_H(t) I_0 \sin \omega t$  である。Hall 抵抗  $R_H(t)$  の時間依存性は印加した AC 電流の振動に由来するものであるから、この AC 電流と、それによって生じる電流誘起有効磁場の線形応答性を考慮すると、Hall 抵抗  $R_H(t)$  は磁場の関数でもあると考えて良い。ここで  $\mathbf{B} = \mathbf{B}_0 + \mathbf{B}_I(I)$  と定義する。ここで、 $\mathbf{B}_0$  は外部磁場や異方性磁場などの、印加電流に対応した時間変化を持たない磁場成分であり、 $\mathbf{B}_I(I)$  は電流誘起有効磁場およびエルステッド磁場を含んだ印加電流に応答する時間変化を示す磁場成分である。ここで、 $R_H(t)$  を磁場の関数であるとみて  $R_H(\mathbf{B})$  とし、 $\mathbf{B}_I(I)$  でべき展開し、 $\mathbf{B}_I(I)$  の 1 次の項までをとると、

$$R_H(\mathbf{B}) \approx R_H(\mathbf{B}_0) + \frac{dR_H}{d\mathbf{B}_I} \mathbf{B}_I \sin \omega t \quad (2.53)$$

右辺第2項で $\sin\omega t$ がかけられているのは、 $\mathbf{B}_I(\mathbf{I})$ が $\mathbf{I}$ に対して線形に応答すると仮定し、時間依存性を持つ部分を明示的に示し、 $\mathbf{B}_I(\mathbf{I})$ およびこれに依存する $R_H(\mathbf{B})$ の時間変化を押し込めたためである。これを $V_H(t) = R_H(t)I_0\sin\omega t$ に代入し、整理すると、

$$\begin{aligned}
V_H(t) &\approx \left\{ R_H(\mathbf{B}_0) + \frac{dR_H}{d\mathbf{B}_I} \mathbf{B}_I \sin\omega t \right\} I_0 \sin\omega t \\
&= I_0 \left\{ R_H(\mathbf{B}_0) \sin\omega t + \frac{dR_H}{d\mathbf{B}_I} \mathbf{B}_I \sin^2 \omega t \right\} \\
&= I_0 \left\{ R_H(\mathbf{B}_0) \sin\omega t + \frac{dR_H}{d\mathbf{B}_I} \mathbf{B}_I (1 - \cos^2 \omega t) \right\} \\
&= I_0 \left\{ \frac{1}{2} \frac{dR_H}{d\mathbf{B}_I} \mathbf{B}_I + R_H(\mathbf{B}_0) \sin\omega t - \frac{1}{2} \frac{dR_H}{d\mathbf{B}_I} \mathbf{B}_I \cos 2\omega t \right\} \\
&= I_0 \left\{ \frac{1}{2} \frac{dR_H}{d\mathbf{B}_I} \mathbf{B}_I + R_H(\mathbf{B}_0) \sin\omega t - \frac{1}{2} \frac{dR_H}{d\mathbf{B}_I} \mathbf{B}_I \sin(2\omega t + \frac{\pi}{2}) \right\} \\
&= I_0 \left\{ R_0 + R_\omega \sin\omega t + R_{2\omega} \sin(2\omega t + \frac{\pi}{2}) \right\} \tag{2.54}
\end{aligned}$$

が得られる。ここで、 $R_0 = \frac{1}{2} \frac{dR_H}{d\mathbf{B}_I} \mathbf{B}_I$ ,  $R_\omega = R_H(\mathbf{B}_0)$ ,  $R_{2\omega} = -\frac{1}{2} \frac{dR_H}{d\mathbf{B}_I} \mathbf{B}_I$  である。これより明

らかなように、第1項には交流成分が無いのでロックイン測定法の原理的に測定されない量となる。ロックイン測定法により検出できるのは第2項と第3項であり、第2項は印加電流と位相および周波数が一致している。また第2項の係数 $R_\omega$ は静的な磁場 $\mathbf{B}_0$ に対する Hall 抵抗の応答を表していることから、磁化の平衡角の情報を反映していると考えられる。第3項は印加電流より $\pi/2$ だけ位相が発展しており、周波数が2倍の成分となっている。この成分はロックイン測定法の高調波モードを用いて2次高調波の測定を行い、位相を $\pi/2$ だけシフトすることによって実験的に測定可能である。第3項の係数は $\mathbf{B}_I$ に依存する形になっているので、磁化の動的な挙動を反映していると考えられる。ここに示した $R_\omega$ および $R_{2\omega}$ を2台のロックインアンプを用いて独立に評価することによって磁化の静的および動的な挙動の評価を行うのがハーモニクホール測定である。しかし、ここに示した形では実際の実験に応用することはできない。そこで、 $R_\omega$ および $R_{2\omega}$ の具体的な内容を知るために異なるアプローチを試みよう。初めに、磁化の角度の定義を明確にする。磁化の角度は極角 $\theta$ および方

位角 $\phi$ を用いて表すこととし、それらの定義は以下の図 2.6 に示すとおりである。

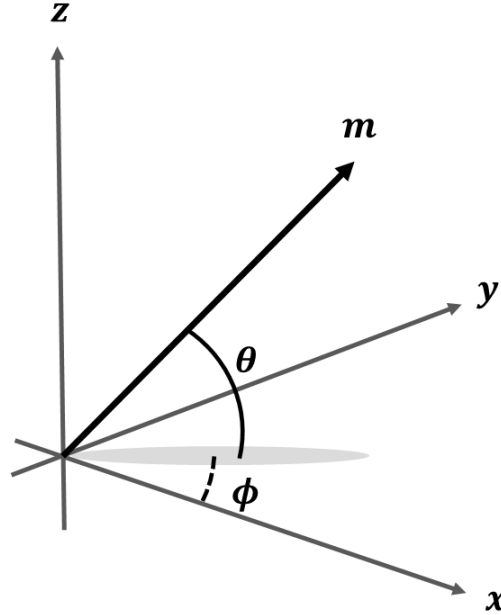


図 2.6: 磁化方向の定義。x 軸は試料の電流印加方向と一致するように選択しており、 $\theta$ は z 軸と一致する方向を原点、 $\phi$ は x 軸と一致する方向を原点とし、反時計回りの方向を正としている。

現象論的に、 $R_\omega$ の磁化の角度に対する依存性は以下の式で表現される。

$$R_\omega = R_{AHE} \cos \theta + R_{PHE} \sin^2 \theta \sin 2\phi, \quad (2.55)$$

ここで、 $R_{AHE}$ および $R_{PHE}$ はそれぞれ異常ホール効果、プレーナーホール効果による磁気抵抗の振幅である。測定した Hall 電圧が電流  $I$  の関数であり、 $V_H(I)$  と表せるとする。平衡状態の磁化の角度を特に $\theta_0$ および $\phi_0$ を用いて表し、 $V_H(I)$ を $I$ を用いて磁化の平衡状態近傍でべき展開すると、

$$V_H(I) \approx V_H(\theta_0, \phi_0) + I \left. \frac{dV_H}{dI} \right|_{\theta=\theta_0, \phi=\phi_0}, \quad (2.56)$$

が得られる。 $V_H(I)$ は式(2.53)に  $I$  を乗じたものであり、この電流微分が印加電流に対

する Hall 電圧の応答性を表す。この式の微分の際に、 $\theta$ および $\phi$ もまた電流に依存する量となっている事に注意し、電流微分を実行する。

$$\begin{aligned}
\frac{dV_H(I)}{dI} &= \frac{d}{dI} \{I(R_{AHE} \cos \theta + R_{PHE} \sin^2 \theta \sin 2\phi)\}, \\
&= \left( R_{AHE} \cos \theta + R_{AHE} I \frac{d \cos \theta}{dI} \right) \\
&\quad + \left\{ R_{PHE} \sin^2 \theta \sin 2\phi + R_{PHE} I \sin 2\phi \left( -2 \cos \theta \frac{d \cos \theta}{dI} \right) + R_{PHE} I \sin^2 \theta \frac{d \sin 2\phi}{dI} \right\}, \\
&= (R_{AHE} \cos \theta + R_{PHE} \sin^2 \theta \sin 2\phi) \\
&\quad + I \left[ (R_{AHE} - 2R_{PHE} \cos \theta \sin 2\phi) \frac{d \cos \theta}{dI} + R_{PHE} \sin^2 \theta \frac{d \sin 2\phi}{dI} \right], \quad (2.57)
\end{aligned}$$

Hall 電圧を微分した結果、このように電流に顕に依存する項とそうでない項に分離することができた。磁化の平衡状態の近傍における微分を考えると、

$$\begin{aligned}
\frac{dV_H(I)}{dI} &= (R_{AHE} \cos \theta_0 + R_{PHE} \sin^2 \theta_0 \sin 2\phi_0) \\
&\quad + I \left[ (R_{AHE} - 2R_{PHE} \cos \theta_0 \sin 2\phi_0) \frac{d \cos \theta}{dI} \Big|_{\theta=\theta_0} + R_{PHE} \sin^2 \theta_0 \frac{d \sin 2\phi}{dI} \Big|_{\phi=\phi_0} \right],
\end{aligned}$$

が得られる。ここで、

$$R_\omega = R_{AHE} \cos \theta_0 + R_{PHE} \sin^2 \theta_0 \sin 2\phi_0, \quad (2.58)$$

$$R_{2\omega} = I \left[ (R_{AHE} - 2R_{PHE} \cos \theta_0 \sin 2\phi_0) \frac{d \cos \theta}{dI} \Big|_{\theta=\theta_0} + R_{PHE} \sin^2 \theta_0 \frac{d \sin 2\phi}{dI} \Big|_{\phi=\phi_0} \right], \quad (2.59)$$

と $R_\omega$ および $R_{2\omega}$ を再定義する。これらを用いると、Hall 電圧の電流による微分は

$$\frac{dV_H(I)}{dI} \Big|_{\theta=\theta_0, \phi=\phi_0} = R_\omega + R_{2\omega}(I), \quad (2.60)$$

という形で、表現されることが示された。この結果は式(2.54)の部分で議論した結果と一

致する。以上の計算により、Hall 電圧の電流に応答しない成分と応答する成分がそれぞれ  $R_\omega$  および  $R_{2\omega}$  に対応することが改めて示され、これらの具体的な表式が明らかになった。 $R_{2\omega}$  を表す(2.59)式において、電流誘起有効磁場の成分をより明示的に示すために以下の変形を行う。

$$\frac{d\cos\theta}{dI} = \frac{d\cos\theta}{dB_I^\theta} \frac{dB_I^\theta}{dI} = \frac{d\cos\theta}{dB_I^\theta} b_\theta, \quad (2.61)$$

$$\frac{d\sin 2\phi}{dI} = \frac{d\sin 2\phi}{dB_I^\phi} \frac{dB_I^\phi}{dI} = \frac{d\cos\theta}{dB_I^\phi} b_\phi, \quad (2.62)$$

ここで、 $b_\theta = dB_I^\theta/dI$  および  $b_\phi = dB_I^\phi/dI$  はそれぞれ  $\theta, \phi$  方向の磁場成分が電流によってどれだけ変調されたかを表しているのだから、形式的にもこれらが電流誘起有効磁場の  $\theta$  および  $\phi$  成分に対応することが明らかである。 $dB_I^\theta, dB_I^\phi$  は磁場の起源によらないため、これを外部磁場  $B_{ext}$  に置き換えて、それぞれ  $dB_I^\theta = B_{ext} d\sin(\theta_B - \theta), dB_I^\phi = B_{ext} \sin\theta_B d\sin(\phi_B - \phi)$  と記述することができる。この変形の意味するところを以下の図 2.7 に図示する。

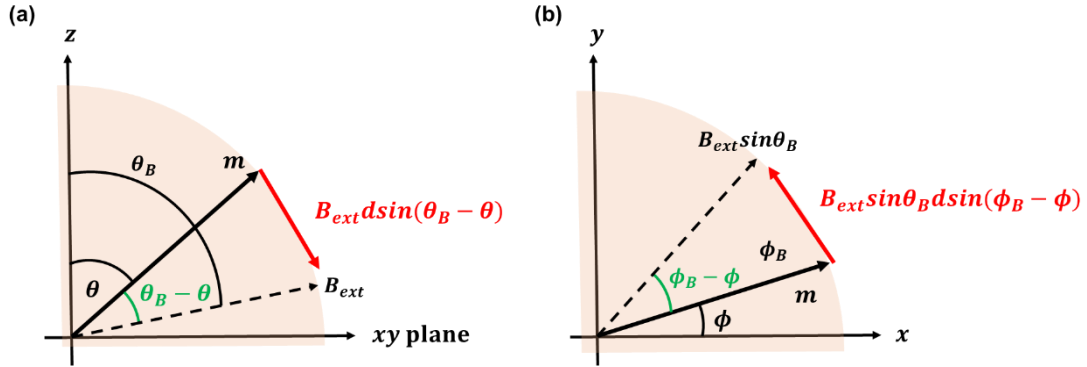


図 2.7: (a)  $(\theta, \phi)$  で定義される方向に印加した外部磁場  $B_{ext}$  の  $\theta$  成分。z 軸を含む任意の断面についての図である。(b) 外部磁場  $B_{ext}$  の  $\phi$  成分。xy 面に対する射影成分を考えた図である。

これに加えて  $d\sin(\theta_B - \theta) = d\theta_B \cos(\theta_B - \theta), d\sin(\phi_B - \phi) = d\phi_B \cos(\phi_B - \phi)$  を用いて式(2.59)を再び記述すると、

$$R_{2\omega} = I \left[ (R_{AHE} - 2R_{PHE} \cos\theta_0 \sin 2\phi_0) \frac{b_\theta}{B_{ext} \cos(\theta_B - \theta)} \frac{d\cos\theta}{d\theta_B} \Big|_{\theta=\theta_0} + R_{PHE} \sin^2 \theta_0 \frac{b_\phi}{B_{ext} \sin\theta_B \cos(\phi_B - \phi)} \frac{d\sin 2\phi}{d\phi_B} \Big|_{\phi=\phi_0} \right], \quad (2.63)$$

以上の議論は電流誘起有効磁場の対称性を考慮し、磁化の平衡角近傍でのべき展開を用いた結果導かれたものである。以下は、実際の実験で物理定数を評価するために現象論的な式を取り込んでゆく。式(2.63)で示した $R_{2\omega}$ の表式には、異常ネルンスト効果[16]によって生じる Hall 電圧を考慮する必要があることが Avci らによって指摘されている[15]。マクロスピンスミュレーションの結果を基にして得られた対称性を考慮して異常ネルンスト効果の寄与を $R_{2\omega}$ の式に取り込むと、

$$R_H^{2\omega} = I \left[ (R_{AHE} - 2R_{PHE} \cos \theta_0 \sin 2\phi_0) \frac{b_\theta}{B_{ext} \cos(\theta_B - \theta)} \frac{d \cos \theta}{d \theta_B} \Big|_{\theta=\theta_0} + R_{PHE} \sin^2 \theta_0 \frac{b_\phi}{B_{ext} \sin \theta_B \cos(\phi_B - \phi)} \frac{d \sin 2\phi}{d \phi_B} \Big|_{\phi=\phi_0} \right] + R_{ANE} \sin \theta \cos \phi, \quad (2.64)$$

という形で、余剰の項が付与される。ここで $R_{ANE}$ は異常ネルンスト効果による Hall 抵抗変化の振幅を表す。本研究では面内磁化の系に対して面内磁場を印加する状況を取り扱うので、 $\theta_B = 90^\circ$  であり、磁化が面内で等方的な磁気異方性を有していると考えて $\theta \approx 90^\circ, \phi \approx \phi_B$  とすると、式(2.59)は更に以下のように変形できる。

$$R_{2\omega} = I \left( R_{AHE} \frac{b_\theta}{B_{ext}} \frac{d \cos \theta}{d \theta_B} \Big|_{\theta=\theta_0} + R_{PHE} \frac{b_\phi}{B_{ext}} \frac{d \sin 2\phi}{d \phi_B} \Big|_{\phi=\phi_0} \right) + R_{ANE} \cos \phi$$

$$= -R_{AHE} \frac{b_\theta}{B_{ext}} + 2R_{PHE} \cos 2\phi \frac{b_\phi}{B_{ext}} + R_{ANE} \cos \phi, \quad (2.65)$$

ここで、 $b_\theta = B_{DL} \cos \phi, b_\phi = B_{FL} \cos \phi$ を用いる。

$$R_{2\omega} = -R_{AHE} \frac{B_{DL} \cos \phi}{B_{ext}} + 2R_{PHE} \cos 2\phi \frac{B_{FL} \cos \phi}{B_{ext}} + R_{ANE} \cos \phi$$

$$= - \left( R_{AHE} \frac{B_{DL}}{B_{ext}} + R_{ANE} \right) \cos \phi + R_{PHE} \frac{B_{FL}}{B_{ext}} (\cos \phi + \cos 3\phi), \quad (2.66)$$

$R_{ANE}$ に負号を含めた。また変形の際に $2\cos \phi \cos 2\phi = \cos 3\phi + \cos \phi$ の関係を用いた。 $B_{DL}/B_{ext}$ の部分の $B_{ext}$ は、 $B_{DL}$ によって磁化が困難軸方向に傾くため、実効的な外部磁場強度として異方性磁場 $B_k$ を用いて $B_{ext} \rightarrow B_{ext} + B_k$ と補正する必要がある。また、 $B_{FL}$ と全く同様の対称性でエルステッド磁場 $B_{Oe}$ が作用するため、 $B_{FL} \rightarrow B_{FL} + B_{Oe}$ と置き換える必要がある。これらの置き換えにより、本研究で用いる最終的な $R_{2\omega}$ は以下のように得られる。



$$R_{2\omega} = -\left(R_{AHE}\frac{B_{DL}}{B_{ext} + B_k} + R_{ANE}\right)\cos\phi + R_{PHE}\frac{B_{FL} + B_{Oe}}{B_{ext}}(\cos\phi + \cos 3\phi), \quad (2.67)$$

この表式から見て取れるように、Garello らの理論では異常ネルンスト効果[16]やスピントラベック効果[17]といった、DL field と同様の対称性で観測される余剰の信号を補正する項が含まれており、これまで考慮されていなかった熱の効果を含めた解析が可能となっている。

## 第 2 章 参考文献

- [1] See “Semiconductor Nanostructures, Oxford university press, Thomas Ihn” to get more information of AB effect. To describe AB effect in detail is not in the scope of this Ph. D thesis.
- [2] S. Hikami, A. I. Larkin, and Y. Nagaoka, Prog. Theor. Phys. **63**, 707 (1980).
- [3] Y. Niimi, D. Wei, H. Idzuchi, T. Wakamura, T. Kato, and Y. Otani, Phys. Rev. Lett. **110**, 016805 (2013).
- [4] R. Enoki, H. Gamou, M. Kohda, and J. Nitta, Appl. Phys. Express. **11**, 033001 (2018).
- [5] R. J. Elliott, Phys. Rev. **96**, 266 (1954).
- [6] Y. Yafet, Phys. Rev. **85**, 478 (1952).
- [7] M. I. D’yakonov and V. I. Perel, Sov. Phys. Solid State **13**, 3023 (1972).
- [8] H. Nakayama, M. Althammer, Y. T. Chen, K. Uchida, Y. Kajiwara, D. Kikuchi, T. Ohtani, S. Geprägs, M. Opel, S. Takahashi, R. Gross, G. E.W. Bauer, S. T. B. Goennenwein, and E. Saitoh, Phys. Rev. Lett. **110**, 206601 (2013).
- [9] M. Althammer, S. Meyer, H. Nakayama, M. Schreier, S. Altmannshofer, M. Weiler, H. Huebl, S. Geprägs, M. Opel, R. Gross, D. Meier, C. Klewe, T. Kuschel, J-M. Schmalhorst, G. Reiss, L. Shen, A. Gupta, Y-T Chen, G. E. W. Bauer, E. Saitoh, and S. T. B. Goennenwein, Phys. Rev. B. **87**, 224401 (2013).
- [10] J. Shan, P. Bougiatioti, L. Liang, G. Reiss, T. Kuschel, and B. J. van Wees, Appl. Phys. Lett. **110**, 132406 (2017).
- [11] S. Vélez, V. N. Golovach, A. Bedoya-Pinto, M. Isasa, E. Sagasta, M. Abadia, C. Rogero, L. E. Hueso, F. S. Bergeret, and F. Casanova, Phys. Rev. Lett. **116**, 016603 (2016).
- [12] T-Y. Chen, S. Takahashi, H. Nakayama, M. Althammer, S. T. B. Goennenwein, E. Saitoh, and G. E. W. Bauer, Phys. Rev. B. **87**, 144411 (2013).

- [13] J. Kim, P. Sheng, S. Takahashi, S. Mitani, and M. Hayashi, Phys. Rev. Lett. **116**, 097201 (2016).
- [14] K. Garello, I. M. Miron, C. O. Avci, F. Freimuth, Y. Mokrousov, S. Blügel, S. Auffret, O. Boulle, G. Gaudin, and P. Gambardella, Nat. Nanotechnol. **8**, 587 (2013).
- [15] C. O. Avci, K. Garello, M. Gabureac, A. Ghosh, A. Fuhrer, S. F. Alvarado, and P. Gambardella, Phys. Rev. B **90**, 224427 (2014).
- [16] G. E. Bauer, E. Saitoh, and B. J. van Wees, Nat. Mater. **11**, 391 (2012).
- [17] K. Uchida, S. Takahashi, K. Harii, J. Ieda, W. Koshibae, K. Ando, S. Maekawa, and E. Saitoh, Nature. **455**, 778-781, (2008).

### 第 3 章 薄膜成長・デバイス作製

本章では測定に用いた試料の結晶構造、磁気特性、電気伝導度特性に関して述べる。

#### 3.1 Ta 層の結晶構造の評価

成長した Ta 薄膜の結晶構造を評価するため X 線回折測定を行った。初めに、 $2\theta - \theta$  の測定結果を以下の図 3.1 に示す。

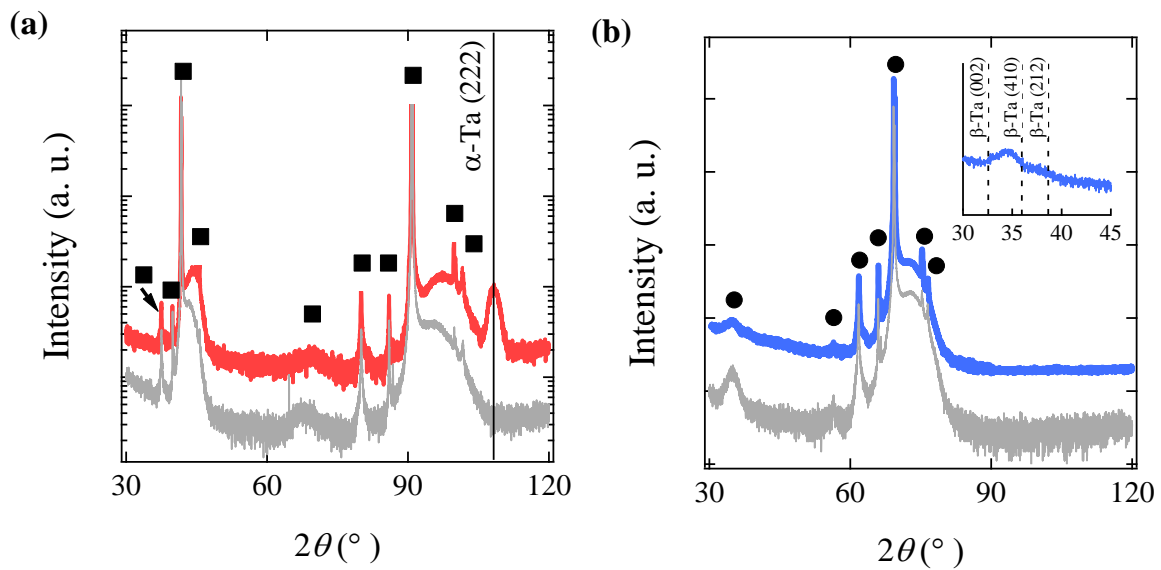


図 3.1: X 線回折による(a)Epi-Ta と(b)Amo-Ta の結晶構造の解析結果。(a)、(b)における赤線、青線はそれぞれ  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Si}(100)/\text{SiO}_x$  基板上に成長した Ta 層を含んだデータである。グレーの線は基板のみのデータである。Ta 層の膜厚はどちらの試料も 10 nm である。黒い四角や丸は基板由来のピークに対応する。(b)の挿図は低角領域の拡大図である。

この測定結果から明らかなように、epi-Ta の結晶構造を反映した図 3.1(a)では  $\alpha\text{-Ta}(222)$  に対応するピークが Ta のピークとして観測されたため、エピタキシャル成長している可能性がある。しかし、現段階ではテクスチャとなっている可能性もあるため、後述する  $\phi$ -スキャンによって面内方向の結晶性も評価しなければエピタキシャル成長しているかどうかを明らかにすることはできない。また、 $\text{Ta}(111)$  のピークが観測されないのは消滅則によって観測されないピークであるためである。一方で amo-Ta の結晶構造を反映した図 3.2(b)では、Ta に対応するピークが一切観測されなかった。このことから、Ta 層の結晶性が非常に低いことが明らかとなった。XRD のピークが観測されない際にその薄膜が微結晶であるのかアモルファスであるのかを切り分けるのは本質的に難しい問題であり、またこの点を

詳細に明らかにすることは本論文の趣旨とは異なるため、図 3.1(b)に示したデータを根拠としてこの構造をアモルファスと呼ぶこととする。また、類似の条件で成膜した Ta 層が今回用いた膜厚領域ではアモルファスとなっていたことから、今回の条件で成長した Ta 層はアモルファスになっていると考えられる[1]。

続いて、epi-Ta の構造をより詳細に評価するために、X 線回折測定 of  $\phi$ -スキャンおよび  $2\theta \chi/\omega$  スキャンを行った。これらの測定結果を以下の図 3.2 に示す。

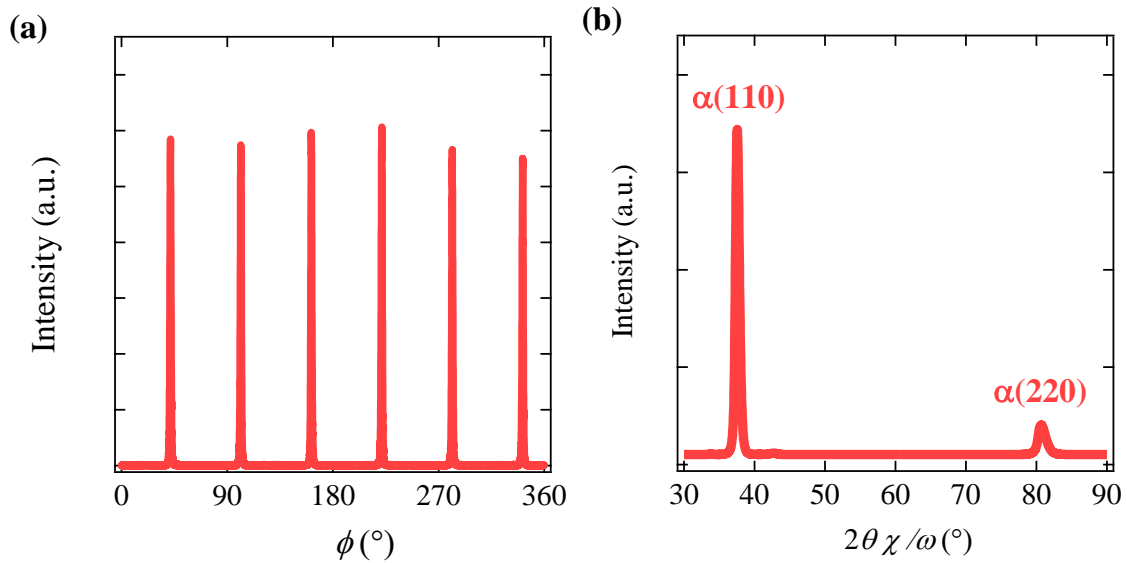


図 3.2: Epi-Ta の試料における(a)  $\phi$ -スキャンおよび(b)  $2\theta \chi/\omega$  スキャンによる X 線回折測定結果。縦軸は線形スケールで表されている。Ta 層の膜厚は 10 nm である。

図 3.2(a)の結果から明らかなように、今回作製した epi-Ta 薄膜は面内方向にも配向性を持っており、その回転対称性は 6 回対称である。また、図 3.2(b)の結果から明らかなように、面内方向には  $\alpha$ -Ta(110)および(220)に対応するピークが観測され、面内方向には(110)面が配向しており、その他の面を含まないことがわかる。このことから、面直方向に(111)面が配向したエピタキシャル薄膜が得られていることがわかる。この結果を更に補強するため、透過電子線顕微鏡(transmission electron microscopy : TEM)による構造評価を併せて行った。断面の TEM 像とその高速フーリエ変換(fast Fourier transform : FFT)を図 3.3, 3.4 に示す。

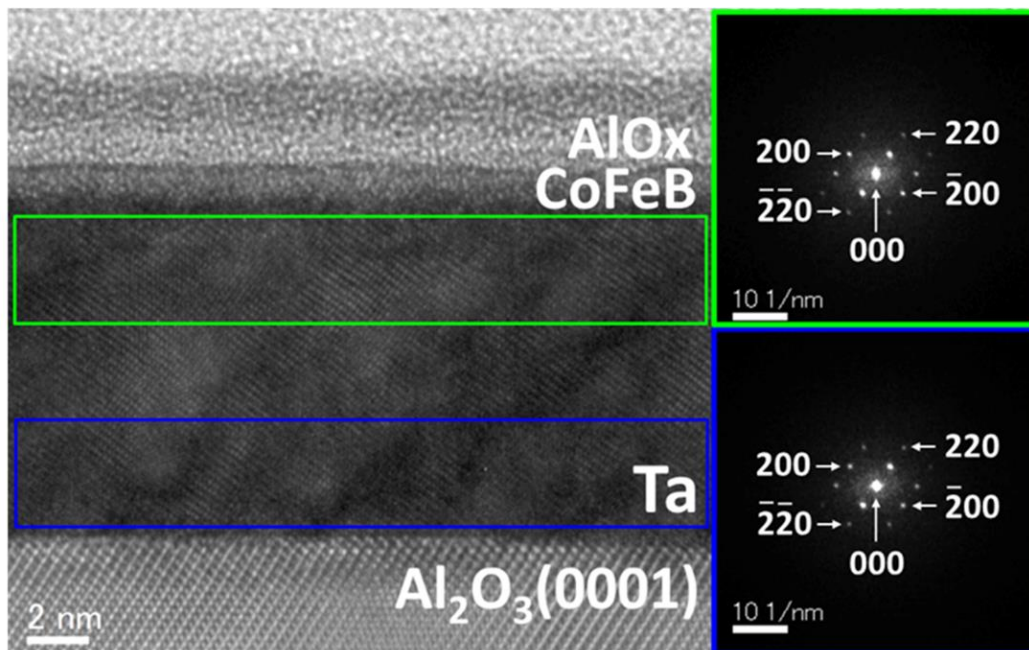
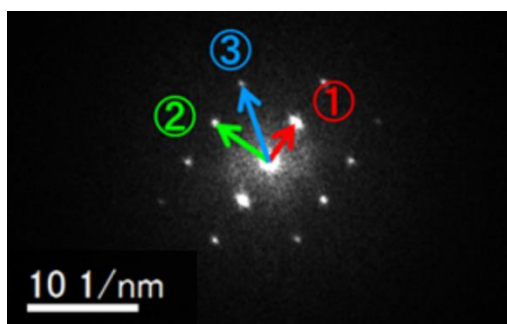


図 3.3: Epi-Ta の試料の断面 TEM 像(左)およびその FFT(右)。FFT の対象とした Ta 層の実空間の領域を強磁性層に近い側の Ta 上部と基板に近い側の Ta 下部に分割しており、それぞれ対象領域を対応する色の枠(Ta 上部：緑、Ta 下部：青)で囲んでいる。FFT の各対象領域の膜厚はそれぞれ 4 nm である。試料の Ta 層の膜厚は 10 nm である。



	実測値	Ta (cubic) 文献値	
	[Å]	<i>hkl</i>	[Å]
①	2.3	110	2.3380
②	1.7	200	1.6530
③	1.4	211	1.3500

図 3.4: (左)Epi-Ta の試料の断面 TEM 像より得た FFT。(右)左図に示した方向に対応する格子定数の実測値と理論値の比較。

TEM 像およびその FFT によって明らかになったように、Ta 層の結晶性は良好であり、面内方向には  $\alpha$ -Ta(110)面が配向していることがわかる。この結果は図 3.2(b)に示したものと一致する結果となっている。また、FFT の結果は明瞭なスポット状になっており、スポットの広がりや周期性は Ta 層の上部と下部で違いは見られない。更に得られた格子定数は図 3.4 に示すような値となり、これは理論的な  $\alpha$ -Ta とよく一致するため、全体が  $\alpha$ -Ta となっていることが明らかである。以上の結果から、この構造の Ta は単結晶になっている可能性もある。しかし、ここまでの測定では逆位相のドメインが存在しないことを証明できない。X 線の測定では逆位相のドメインを区別できず、また TEM 像は局所的なデータであるから、結晶全体で逆位相のドメインが存在しないことを証明できない。このような理由から、本研究ではこの構造をエピタキシャル Ta と呼称することとしている。

以上の結果をまとめると、epi-Ta は面直方向に(111)面が配向するエピタキシャルな結晶になっており、また amo-Ta は結晶性を持たないアモルファスになっていることが X 線回折測定および TEM 像から明らかとなった。

### 3.2 原子間力顕微鏡による Ta 層表面粗さの評価

Ta 表面の粗さは、様々な輸送特性に影響を及ぼすと考えられる。そのため、Ta 表面の形状を知ることは今後示す epi-Ta の特性を考察する上で重要である。今回の研究では原子間力顕微鏡(atomic force microscopy : AFM)による Ta 層表面粗さの評価を行った。実験結果を以下の図 3.5 に示す。

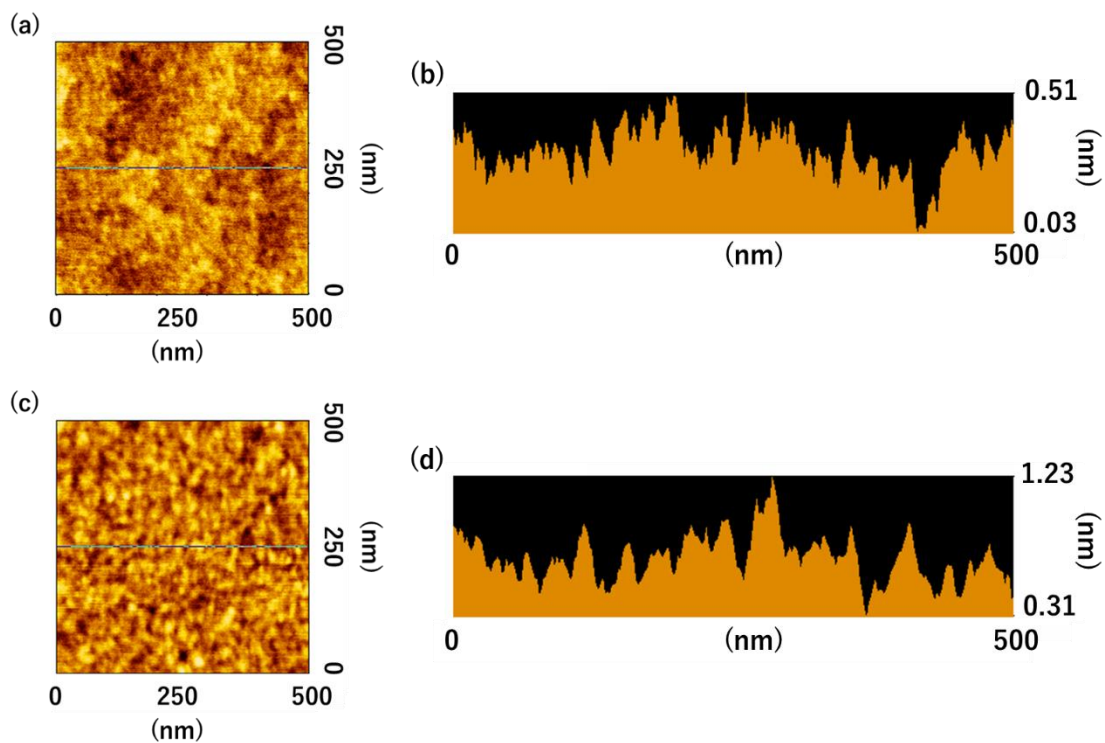


図 3.5: Epi-Ta に関する(a)試料表面の高低差の空間マッピングおよび(b)y=250 nm における断面図。Amo-Ta に関する(c)試料表面の高低差の空間マッピングおよび(d)y=250 nm における断面図。試料膜厚はどちらのサンプルも 10 nm である。

この測定により得られた平均面粗さは、epi-Ta のもので 0.07 nm, amo-Ta のもので 0.11 nm であった。平均表面粗さの値は amo-Ta の方が epi-Ta よりも 1.5 倍程度大きいものの、どちらの表面も非常に良好な平坦性を有していることがわかる。



### 3.3 デバイス構造とデバイス作製プロセス

本論文で取り扱う測定に用いたデバイスは全てフォトリソグラフィと Ar イオンミリングおよび電子ビーム蒸着装置を用いて作成した。以下の図 3.6 にそのフローチャートを示す。

<サンプル作製条件>

- ①Spin coating (2 drops, spin coater 4000 rpm, 60sec)
- ②Baking (hot plate 115 °C, 90 sec)
- ③Exposure time of UV (8.7 sec)
- ④Development (60 sec in developer & 20 sec in water, N<sub>2</sub> blow)
- ⑤Ar ion milling (1.5 min)
- ⑥Lift off (Acetone, at 60°C for 10 min, rinse with alcohol and N<sub>2</sub> dry)
- ⑦Contact pad (Ti 5 nm/Au 80 nm)

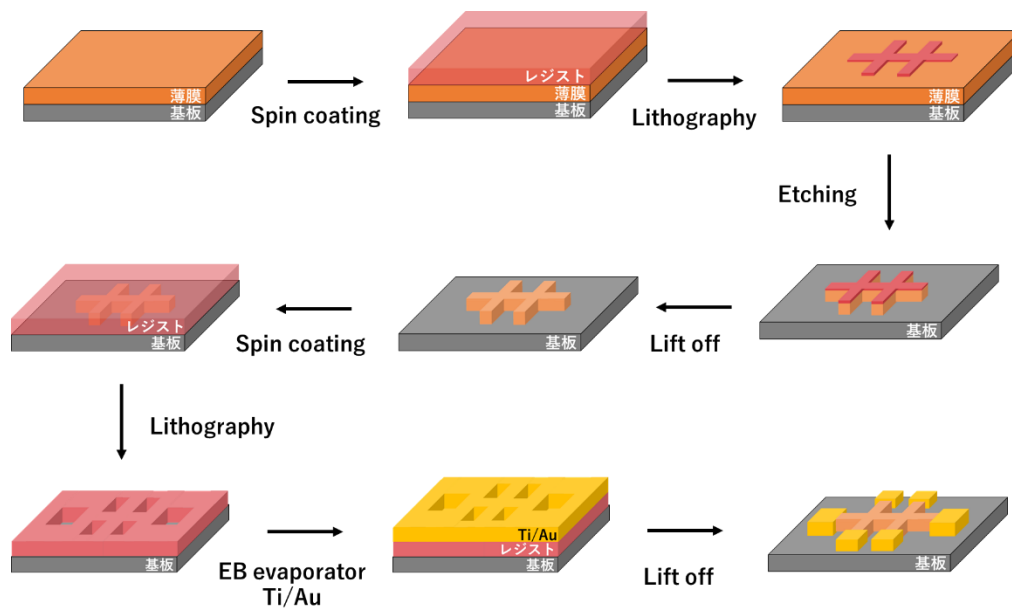


図 3.6: サンプル作成のフローチャート

### 第3章 小括

本章では、成長した薄膜の特性評価およびデバイス作製プロセス、に関して言及した。Epi-Ta の下地層は良好な結晶性を持っており、格子定数がバルクの  $\alpha$ -Ta のものと良い一致を示すことから、確かに  $\alpha$ -Ta の単相薄膜がエピタキシャル成長していることを確認した。Amo-Ta の試料はそれに対する参照試料として、従来の研究結果と類似した特性を示すものと期待して作製した。後の章に示したように、amo-Ta のデバイスは先行研究で得られているものと類似した特性を示すことが示される。ここに示したデバイス作製プロセスを基にして作製されたデバイス群を用いて次章以降の測定を行った。

## 第 4 章

### エピタキシャル $\alpha$ -Ta 薄膜中の特異なスピン緩和現象

第 4 章では、epi-Ta および amo-Ta の極低温における Ta 単層薄膜中の量子干渉効果に着目した測定によって評価したスピン緩和機構に関して議論する。Ta は極低温において超電導転移を示すため、超電導による磁気電導度の補正を考慮した解析を行った。 $\tau_{so}$  の  $D$  に対する依存性から明らかとなったスピン緩和機構は amo-Ta においては従来金属系で支配的と考えられている EY 機構が観測されたのに対し、エピタキシャル Ta では通常金属ではみられない DP 機構によるスピン緩和が支配的となっていた。この結果は、界面の構造反転対称性の破れに由来した Rashba 効果の寄与が金属系のスピン緩和に対しても重要な役割を果たすことを示している。

#### 4.1 Ta 薄膜中のスピン緩和機構を議論する方針

第 2 章に示した量子干渉効果に着目した測定の手続きに沿って Ta 薄膜中のスピン緩和機構の評価を行う。第 3 章に示した構造の epi-Ta および amo-Ta 単層薄膜を用いて、幅  $20\ \mu\text{m}$ 、長さ  $160\ \mu\text{m}$  のホールバー構造に微細加工し、 $^4\text{He}$  クライオスタットを用いて磁気抵抗測定およびホール測定を行った。デバイスの積層構造および光学顕微鏡によって撮影したデバイスの形状を以下の図 4.1 に示す。ここに示したデバイス群を用いて得られた測定結果を次節以降に示す。

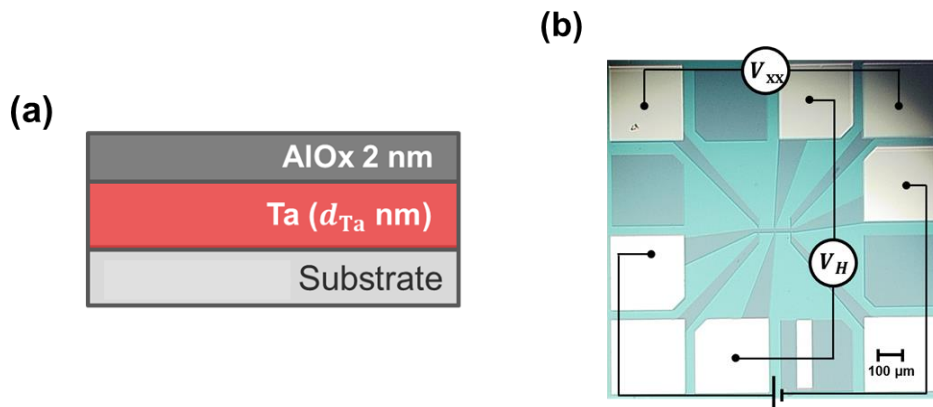


図 4.1:(a)第 4 章での測定に用いたデバイスの積層構造および(b)光学顕微鏡によって観察したデバイスの形状を示す写真。測定時の回路図を写真上に示している。

## 4.2 Ta 薄膜の基礎物性値

測定によって得られた Ta 薄膜の基礎物性値の膜厚依存性を以下にまとめる。ここで示すのは比抵抗(図 4.2)、3 次元のキャリア濃度(図 4.3)、拡散係数(図 4.4)、超電導転移温度(図 4.5, 4.6)の Ta 層の膜厚依存性である。これらの物性値はスピン緩和機構を議論する上で重要なデータとなる。図 4.2 より比抵抗は epi-Ta の方が amo-Ta よりも高くなっていることがわかる。epi-Ta の膜厚が厚い部分の比抵抗はバルクと同程度となっており、また、amo-Ta の比抵抗は従来報告されている  $\beta$ -Ta やアモルファス Ta のものと同程度となっている。Hall 測定によって求めたキャリア濃度に関しても金属として典型的なアボガドロ数個程度の電子が存在することがわかる。これらの比抵抗とキャリア濃度の値を用いて拡散係数を導出した。得られた拡散係数の Ta の膜厚依存性を以下の図 4.4 に示す。

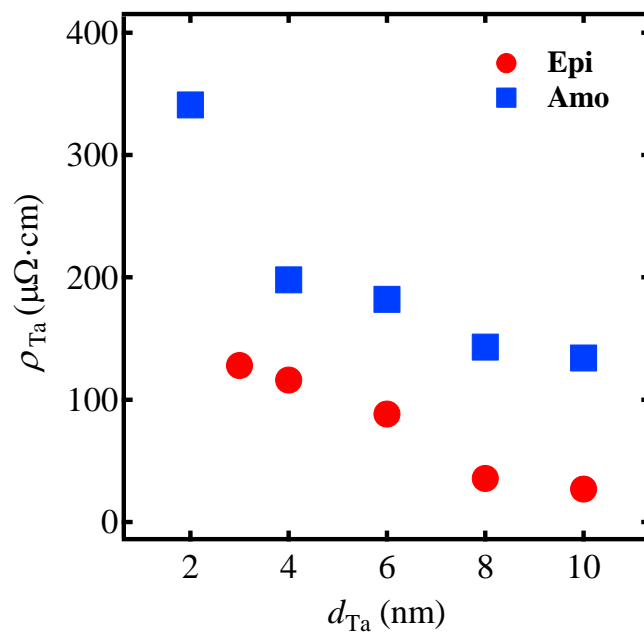


図 4.2: Epi-Ta および amo-Ta の比抵抗の Ta 層の膜厚依存性。

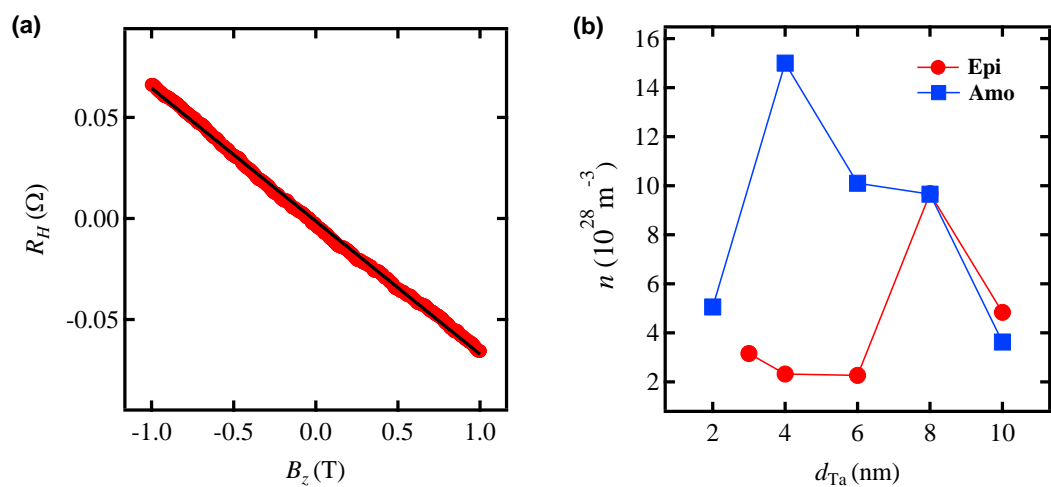


図 4.3: (a)典型的な Hall 測定の実データとそれに対する線形フィッティング。  
測定に用いたデバイスは epi-Ta 3 nm のものである。(b) Epi-Ta および  
amo-Ta の 3 次元のキャリア濃度の Ta 層の膜厚依存性。

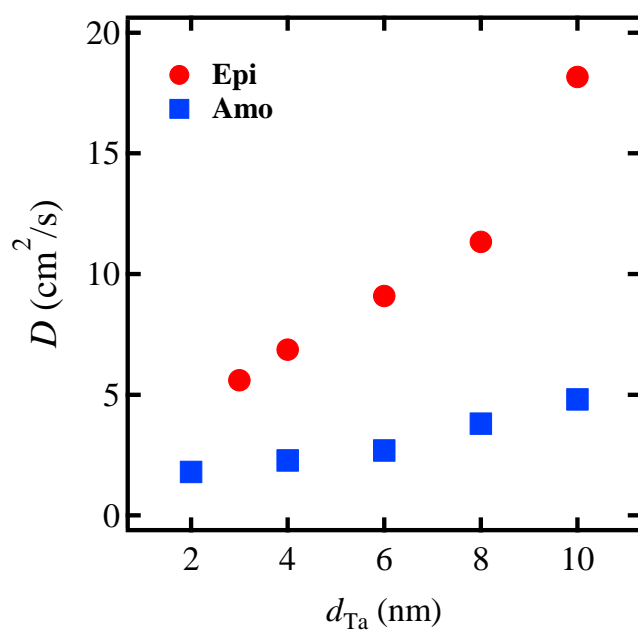


図 4.4: Hall 測定によって求めたキャリア濃度を用いて算出した拡散係数の Ta 層の膜厚依存性。

求めた拡散係数は epi-Ta と amo-Ta の比抵抗の違いを反映し、epi-Ta のもののほうが amo-Ta のものよりも大きな値となった。Ta は超電導体であり、バルクの単結晶における超電導転移温度は 4.5 K である。超電導の効果は量子干渉効果に対して余剰の影響を与えるため、その効果を解析で考慮するために超電導転移温度を測定した。超電導転移温度の評価は、一部のサンプルでは  $^4\text{He}$  三軸クライオスタットの測定温度範囲では評価が困難であったため、0.3 K まで測定温度を低下させることができる  $^3\text{He}$  クライオスタットを用いて測定を行った。初めに、素子抵抗の値を測定温度に対してプロットした図 4.5 を示す。図 4.5(a) に示すように、Epi-Ta のデバイスでは、測定に用いたすべての素子で超電導転移を確認することができ、膜厚を減少させるにしたがって超電導転移温度が低下することが明らかとなった。一方で図 4.5(b) に示すように、Amo-Ta のデバイスでは、2 nm のデバイスでは超電導転移が観測されなかったが、超電導転移温度の膜厚に対する定性的な変化は epi-Ta のものと類似していることが明らかである。超電導転移温度の定義は上部超電導転移温度とし、その値の求め方を図 4.6(a) に示した。図 4.6(b) に得られた超電導転移温度を Ta 層の膜厚に対してプロットした。以上が本実験を進めるうえで重要なパラメータの実験値である。これらの値を用いて、磁気抵抗測定によって得られた量子干渉効果のシグナルに対して理論式を用いたフィッティングによる解析に関する部分を、続く 4.3 節で述べることとする。

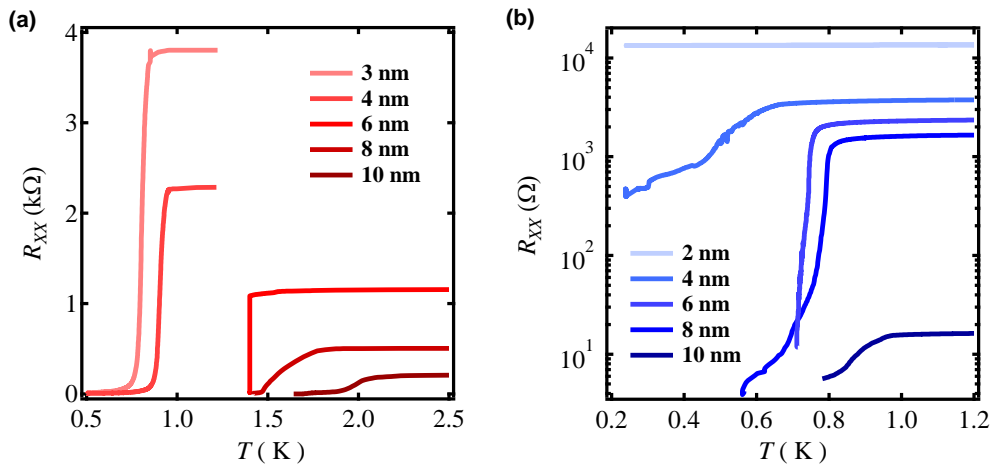


図 4.5:(a)Epi-Ta と (b)amo-Ta の素子抵抗の温度依存性。Epi-Ta の膜厚 6 nm 以上のデバイスを除いては  $^3\text{He}$  クライオスタットを用いて測定した。

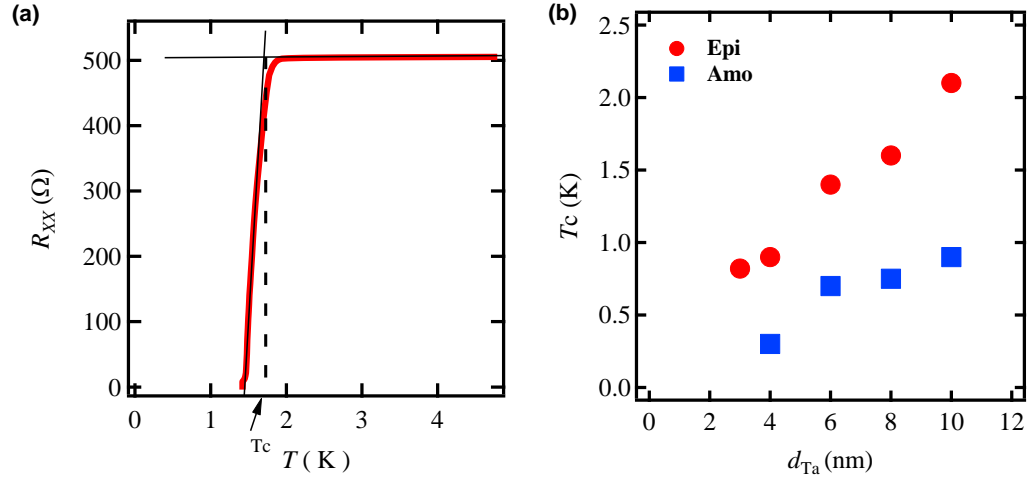


図 4.6:(a)超電導転移温度の定義。示しているデータは epi-Ta 8 nm のデバイスのもの。  
(b)測定によって得られた超電導転移温度の Ta 層の膜厚依存性。

### 4.3 磁気伝導度特性の評価とその解析

極低温における磁気伝導度には面直磁場の符号反転に対して偶関数のシグナルが得られる。その実験値に対して理論式をフィッティングすることでスピン軌道長および位相緩和長をフィッティングパラメータとして得ることができる。フィッティングに用いた理論式は Hikami-Larkin-Nagaoka(HLN)の式[2]を使用することを試みた。

$$\sigma_{HLN} = -\frac{e^2}{2\pi^2\hbar} \left[ \Psi \left( \frac{B_{SO}+B_e}{B_z} + \frac{1}{2} \right) - \frac{3}{2} \Psi \left( \frac{\frac{4}{3}B_{SO}+B_\phi}{B_z} + \frac{1}{2} \right) + \frac{1}{2} \Psi \left( \frac{B_\phi}{B_z} + \frac{1}{2} \right) \right], \quad (4.1)$$

ここで、 $\Psi = \psi(x + 1/2) - \ln(x)$ であり、 $\psi$ はダイガンマ関数である。ホールバー構造を作成し、8 Kにおいてサンプルに面直磁場を印加し、磁気電導度特性を評価した。しかし、Taにおいては超電導の効果が極低温では無視できないので、まずはこの超電導による磁気伝導度に対する余剰の補正効果に関して議論する必要がある。初めに、生データとして典型的な超電導の寄与を含んだ磁気抵抗を図 4.7 に示す。図 4.7(a)に示した 2 Kにおける典型的な測定結果では、ゼロ磁場近傍の抵抗値がゼロとなっており、超電導転移が見られている。一方で、8 Kにおけるデータを示した図 4.7(b)では、通常の量子干渉効果で得られる抵抗変化のオーダーに磁気抵抗変化が収まっている。式(4.1)は図 4.7(b)にあるようなデータを記述する理論式であり、フィッティングパラメータの値をどのように変えても図 4.7(a)のデータを再現することはできない。図 4.7(b)に示したデータを黒の破線で図 4.7(a)に示して

あるが、この違いの大きさを考えても、超電導による磁気抵抗に対する補正効果は顕著である。

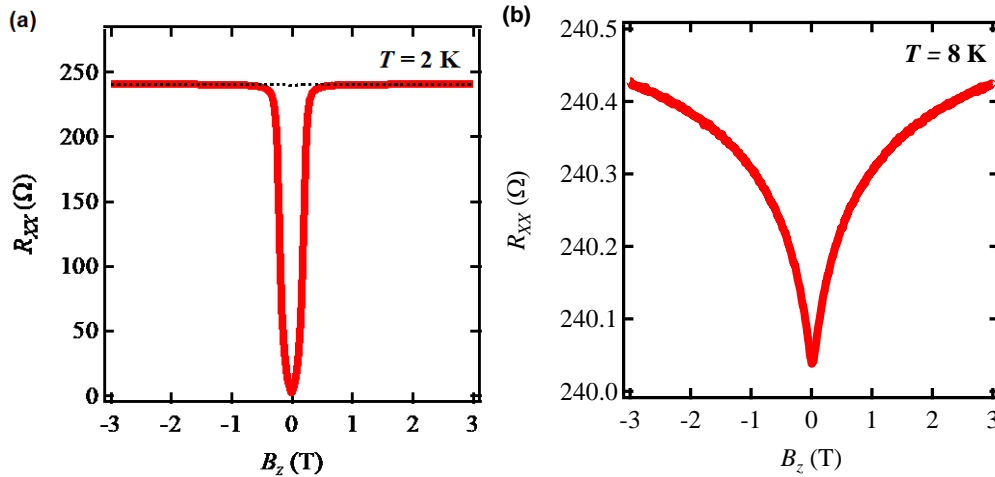


図 4.7: (a)2 K および(b)8 K における epi-Ta 8 nm のデバイスの磁気抵抗測定の実データ。

(a)における黒の破線は(b)に示したデータと同一のものであり、低温における超電導揺らぎの効果が顕著であることが明らかである。

この超電導による磁気抵抗(磁気伝導)に対する余剰の補正効果は超電導揺らぎの効果と呼ばれ、より超電導転移温度に近い領域で支配的な Aslamasov-Larkin (AL)型の直接過程の相互作用[2]によるものと、より高温側で支配的な Maki-Thompson (MT)型の間接過程の相互作用[3-5]によるものの2種類に分類される。超電導揺らぎの効果は、超電導転移温度近傍の常伝導状態でみられる現象であり、超電導を担う Cooper 対の生成・消滅が超電導転移温度以上でも起こっていることがその原因である。超電導相が試料全体に生じているというわけではなく、通常の電子と Cooper 対の2流体伝導となっている状態と解釈することもできる。AL 型と MT 型の超電導揺らぎの効果は $\ln(T/T_c)^{-1}$ という無次元のパラメータによって支配的な温度領域が決まっている。AL 型の超電導揺らぎの効果は、超電導転移温度のごく近傍でのみ支配的となり、 $1 \gg \ln(T/T_c)^{-1}$ の条件下では無視できることが明らかとなっている[2]。ここでは解析を簡便にするために、本研究では全てのデバイスで $1 \gg \ln(T/T_c)^{-1}$ の条件を満足するようにし、AL 型の超電導揺らぎの寄与を無視できるように測定温度を設定した。そのような温度領域を決定するために、図 4.6(b)に戻ると、用いたデバイスの中で最も高い超電導転移温度を示したものは epi-Ta 10 nm のデバイスであったことから、このデバイスの超電導転移温度を基準に測定温度を決定した。図 4.8 に示すように、測定温度を 8 K とした場合には $\ln(T/T_c)^{-1} = 0.75$ が得られることから、8 K を測定温度とした。



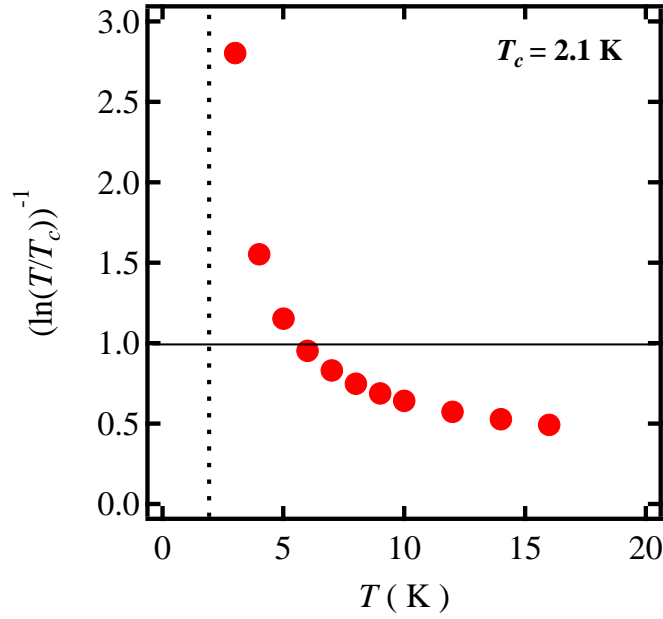


図 4.8: Epi-Ta 10 nm のデバイスの超電導転移温度 2.1 K に着目して求めた温度に対する  $\ln(T/T_c)^{-1}$  の値。破線は超電導転移温度  $T_c$  を表し、黒の実線が  $\ln(T/T_c)^{-1} = 1$  に相当する。

AL 型の超電導揺らぎの効果を無視できるような場合でも、MT 型の超電導揺らぎの効果は無視できない。そのため、実験結果をうまく説明するためには理論的に MT 型の超電導揺らぎの補正項を取り入れることが必要である。量子干渉効果に超電導揺らぎの効果を取り入れる研究は 1990 年代に既に行われている[6,7]。先行研究によると、MT 型の超電導揺らぎの補正項  $\sigma_{MT}$  は次の式(4.2)に示す形で表される。

$$\sigma_{MT} = -\frac{e^2}{2\pi^2\hbar}\gamma(T)\left[\Psi\left(\frac{B_e}{B_z} + \frac{1}{2}\right) - \Psi\left(\frac{B_\phi}{B_z} + \frac{1}{2}\right)\right], \quad (4.2)$$

ここで、 $\gamma(T)$  は Larkin の相互作用パラメータと呼ばれる無次元の量であり、MT 型の超電導揺らぎの効果の強さを決定する係数となる。この式の形は式(4.1)において  $B_{so} = 0$  において  $\gamma(T)$  をかけたものに対応している。これは、この補正項を導入することによってスピン軌道長に大きな変調を与えないことを意味している。解析に用いた  $\gamma(T)$  は先行研究[]において算出された、表 4.1 に示した値を用いて計算した。ここで、 $g = -\ln(T/T_c)^{-1}$  である。得られた  $\gamma(T)$  の値を図 4.9 に示した。

表 4.1:  $\gamma(T)$  この表の  $\beta$  が本論文における  $\gamma$  に対応している

TABLE I.

$-g(T)$	-0.1	0.1	0.2	0.3	0.5	0.8	1	2	5	10
$\beta(T)$	0.017	0.015	0.06	0.13	0.33	0.73	1.05	3	9.8	22

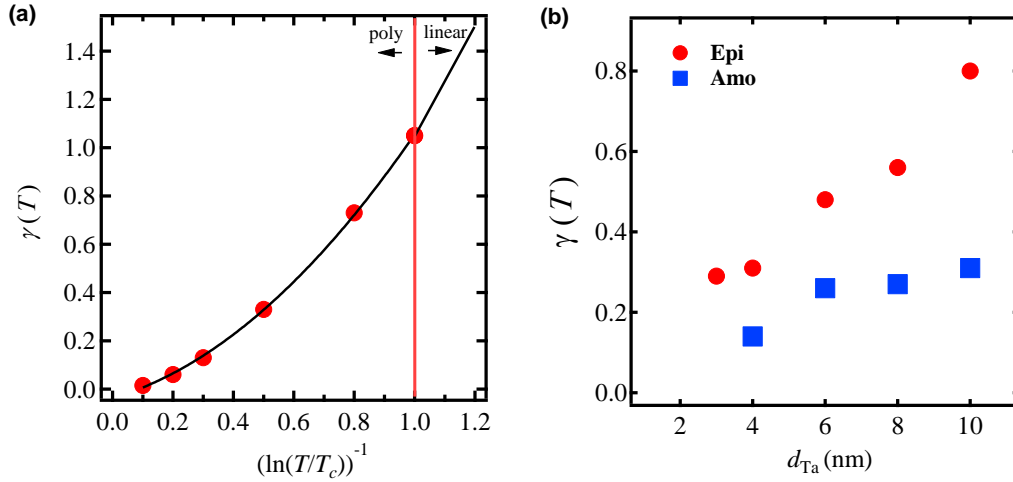


図 4.9: (a) 表 1 で示されている  $\gamma(T)$  の値に対する 2 次曲線フィッティング。(b) (a) で得られた 2 次曲線および各デバイスの超電導転移温度を用いて算出した  $\gamma(T)$  の Ta 層の膜厚依存性。

以上で解析の準備が整った。超電導揺らぎの効果を考慮した新たな解析式を以下の式 (4.3) に定義する。

$$\begin{aligned}
 \Delta\sigma &= \sigma_{HLN} + \sigma_{MT} \\
 &= -\frac{e^2}{2\pi^2\hbar} \left[ \left\{ \Psi\left(\frac{B_{SO}+B_e}{B_z} + \frac{1}{2}\right) - \frac{3}{2}\Psi\left(\frac{\frac{4}{3}B_{SO}+B_\phi}{B_z} + \frac{1}{2}\right) + \frac{1}{2}\Psi\left(\frac{B_\phi}{B_z} + \frac{1}{2}\right) \right\} + \right. \\
 &\quad \left. \left\{ \gamma(T) \left[ \Psi\left(\frac{B_e}{B_z} + \frac{1}{2}\right) - \Psi\left(\frac{B_\phi}{B_z} + \frac{1}{2}\right) \right] \right\} \right], \quad (4.3)
 \end{aligned}$$

ここに示す理論式を用いることによってどの程度フィッティング精度が向上するかを以下の図 4.10 に示す。ここに示すように、式(4.1)に示した HLN の式のみでは高磁場側のデータを表現することができなかったのに対し、式(4.3)に示した補正項を含めた式を用いた場合には実験データ全体を精度よく再現することができていることが明らかである。

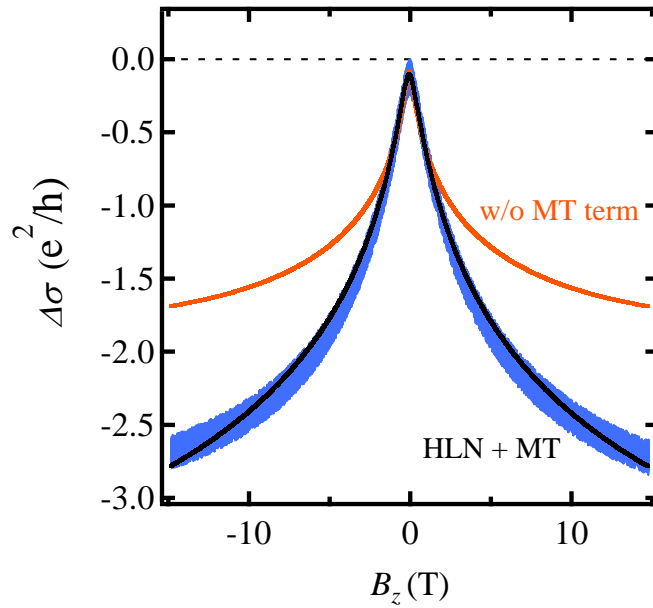


図 4.8: HLN 公式によるフィッティング(橙実線)と MT 項を追加したときのフィッティング(黒実線)の違い

この理論式を用いて、実験的に評価した 8 K における磁気伝導度変化に対してフィッティングを行い、スピン軌道長および位相コヒーレンス長の同定を行った。磁気伝導度の実験データおよびそのフィッティング結果を以下の図 4.9 に示す。ここに示したように、すべての実験データは式(4.3)によってよく再現されることが明らかである。続いて磁気伝導度特性の温度依存性に関して述べる。図 4.10 に示すように、epi-Ta, amo-Ta どちらのデバイスにおいても、磁気伝導度の変化分は測定温度が高い場合の方が小さくなっており、位相コヒーレンス長の温度依存性を反映した量子干渉効果特有の振る舞いが観測されている。このことから、今回測定したデータは古典的な効果ではなく、間違いなく量子干渉効果由来のシグナルであることが示された。次節では、解析によって得られたパラメータを基にしてスピン緩和機構を議論してゆく。

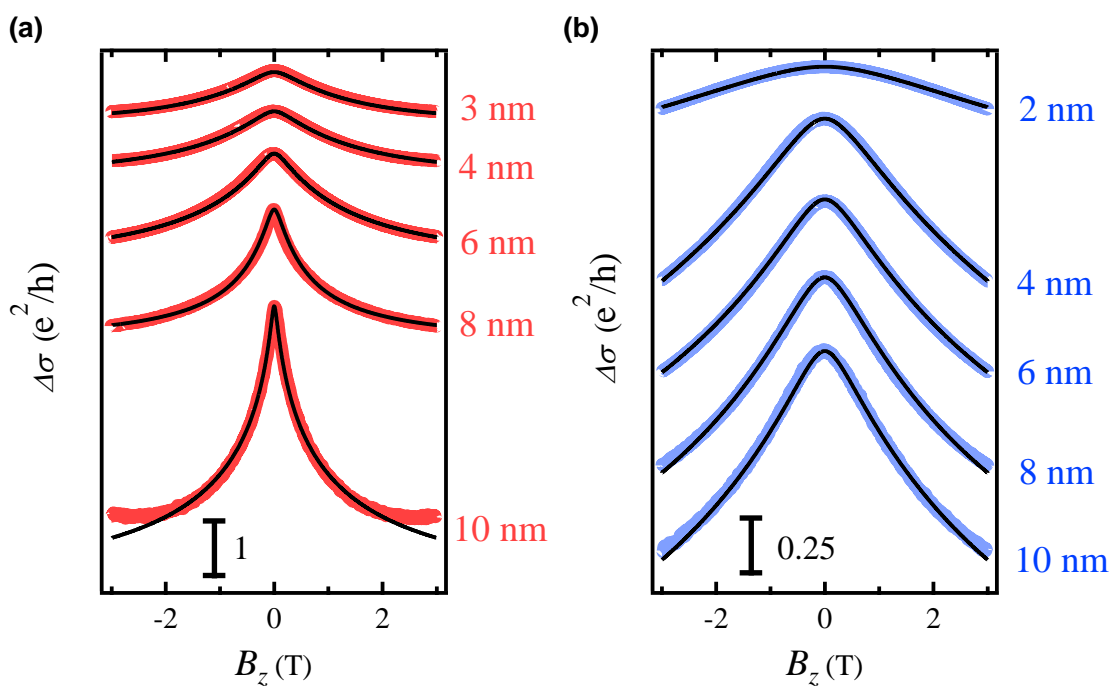


図 4.9: (a)epi-Ta および(b)amo-Ta のデバイスによって得られた磁気伝導度変化の Ta 層の膜厚依存性。黒線は式(4.3)の理論式によるフィッティングである。古典的な磁気抵抗のバックグラウンドは除いたデータを示している。

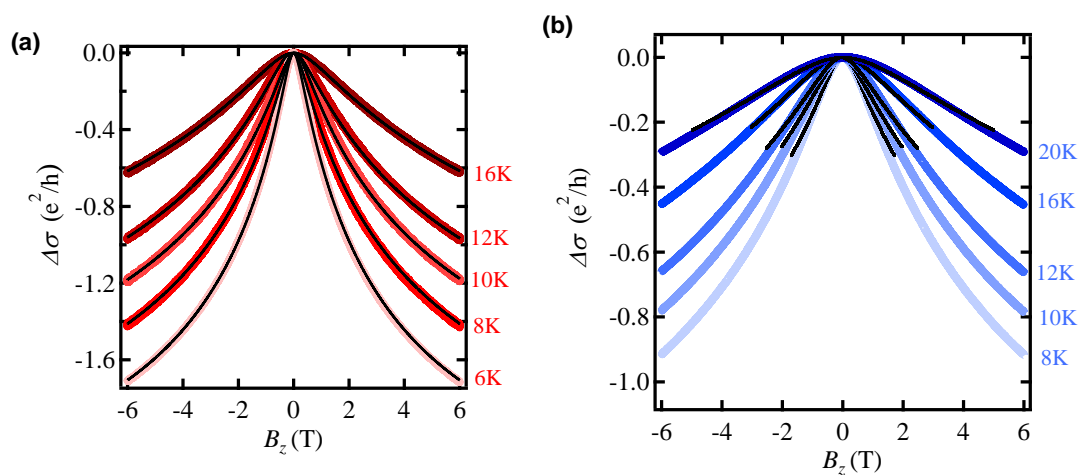


図 4.10: (a)epi-Ta 3 nm および(b)amo-Ta 2 nm のデバイスによって得られた磁気伝導度変化の温度依存性。黒線は式(4.3)の理論式によるフィッティングである。古典的な磁気抵抗のバックグラウンドは除いたデータを示している。

#### 4.4 考察・エピタキシャル Ta 薄膜のスピンの緩和機構

前節に示したように、HLN の式に MT 項を補正項とした理論式を用いて、実験的に得られた磁気伝導度に対してフィッティングを行うことで、スピン軌道長 $L_{SO}$  および位相緩和長 $L_\phi$ が得られた。本章では、得られた $L_{SO}$ を用いてスピン緩和機構を議論する。初めに、フィッティングの結果によって得られた $L_{SO}$ 、 $L_\phi$ および界面の効果を議論するために、実験で見積もったキャリア濃度および比抵抗を用いて算出した $L_e$ の値を以下の図 4.11 に示す。図 4.11(a)より、epi-Ta, amo-Ta どちらのデバイスにおいても膜厚よりも $L_e$ が短くなっている。そのため、この結果を基にすると界面由来の効果は小さいように考えられるが、この点に関しては後に議論することとする。また、得られた $L_{SO}$ は、amo-Ta のデバイスに関しては Ta 層の膜厚に対して増加する傾向が見られたが、epi-Ta のものでは $L_{SO}$ は Ta 層の膜厚に対してほとんど依存性を示さなかった。図 4.11(b)に示したように、 $L_\phi$ も Ta 層の膜厚に対して増加してゆくことがわかる。これらの結果から、全てのデバイスにおいて、 $L_e < L_{SO} < L_\phi$ の関係が満足しており、弱反局在を観測するための特性長の関係が担保されていることが明らかである。

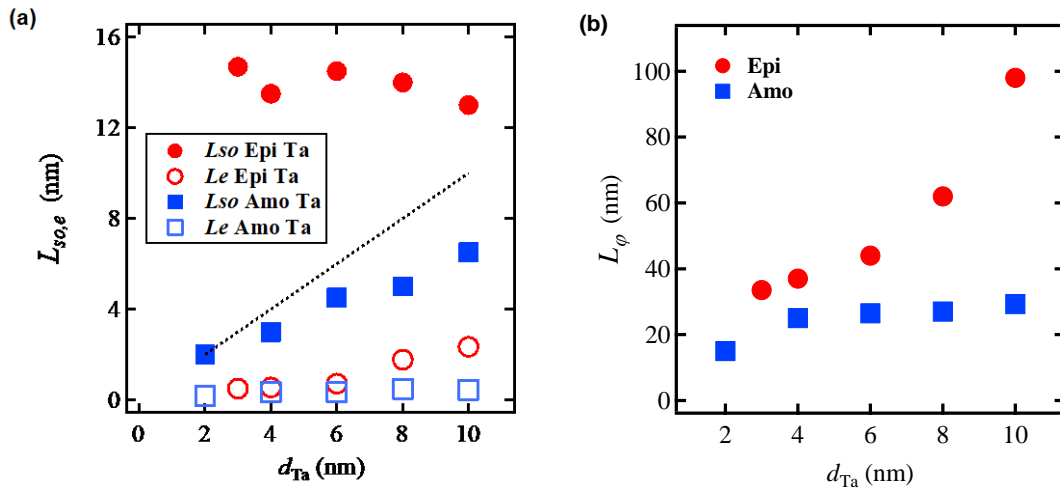


図 4.11: (a)平均自由行程 $L_e$ とスピン軌道長 $L_{SO}$ の Ta 層の膜厚依存性。黒の破線は Ta 層の膜厚を表している。(b)位相緩和長 $L_\phi$ の Ta 層の膜厚依存性。

更に、図 4.12 に示すように、得られた $L_\phi$ は測定温度の上昇に伴って減少する傾向を示したため、弱反局在効果に由来するシグナルを観測していることが明らかである。以上の結果を踏まえると、この実験においては間違いなく量子干渉効果に由来するシグナルを測定しており、同じ膜厚領域においては epi-Ta のデバイスよりも amo-Ta のデバイスの方が $L_{SO}$ が短いことから、SOI の強さが amo-Ta の方が強いことが予想される。このことをより明確に示すために、得られた $L_{SO}$ を拡散係数に対してプロットしたものが以下の図 4.13 である。

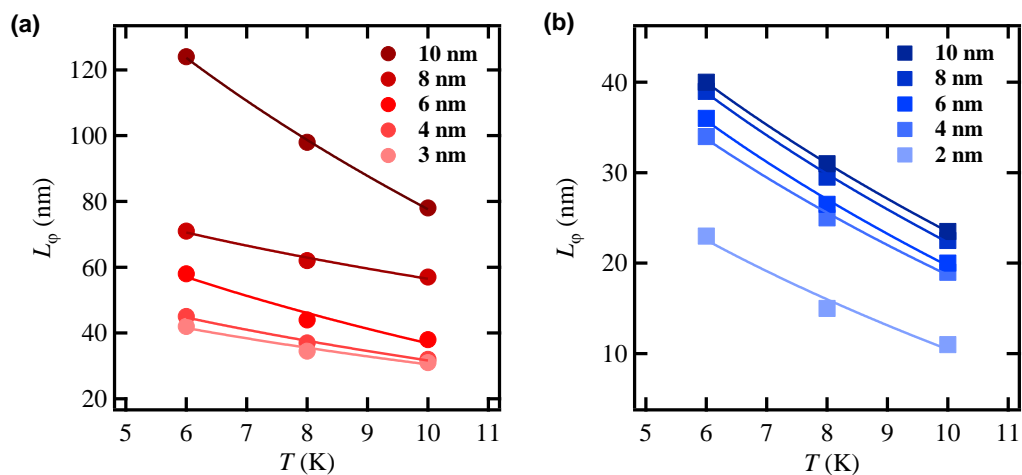


図 4.12:(a)Epi-Ta および(b)amo-Ta の位相緩和長 $L_\phi$ の温度依存性。

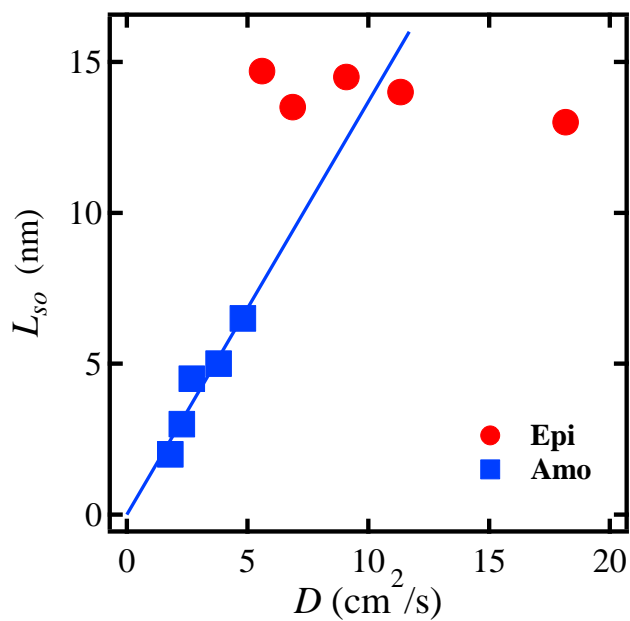


図 4.13:スピソ軌道長 $L_{SO}$ と拡散係数 $D$ の関係。青の実線は amo-Ta のデータに対する原点を通る線形フィッティングである。

図 4.13 より、拡散係数 $D$ に対してスピソ軌道長 $L_{SO}$ を比較した場合においても、amo-Taの方がSOIは強いと考えられる。更に興味深いことに、amo-Taのデータは先行研究[8]で示されているCu系のように、拡散係数に対して比例する関係を示すが、epi-Taの場合はそ

のような依存性では説明できず、むしろ拡散係数に対して $L_{SO}$ が依存性を示さないことが明らかとなった。更に、得られた $L_{SO}$ をスピン緩和時間 $\tau_{SO}$ に変換するため、以下の式(4.4)を用いた。

$$L_{SO} = \sqrt{D\tau_{SO}} \quad (4.4)$$

得られたスピン緩和時間を拡散係数および Ta 層の比抵抗に対してプロットしたグラフを図 4.14 に示す。

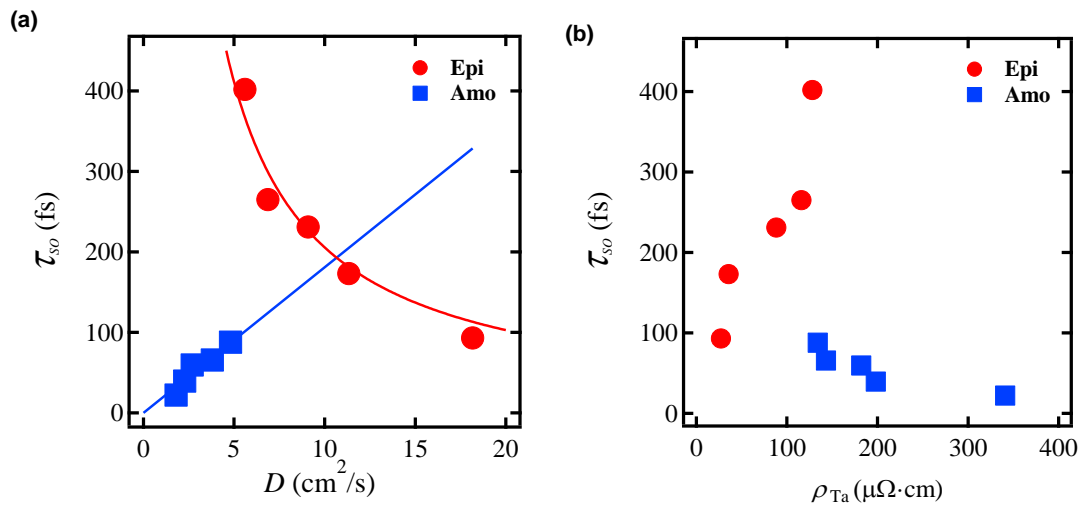


図 4.14:(a) スピン緩和時間 $\tau_{SO}$ と拡散係数 $D$ の関係。実線は、epi-Ta のデータに対しては $\tau_{SO} = 1/D$ 、amo-Ta のデータに対しては $\tau_{SO} = D$ によるフィッティングの結果を示す。  
(b) スピン緩和時間 $\tau_{SO}$ と比抵抗 $\rho_{Ta}$ の関係。

図 4.14(a)から明らかであるように、amo-Ta 薄膜に関してはスピン緩和時間 $\tau_{SO}$ が拡散係数 $D$ に対して比例する関係となっているが、epi-Ta に関しては反比例する関係となっていることが明らかになった。これは、amo-Ta では一般的に金属で支配的であると考えられている EY 機構のスピン緩和[9,10]が支配的であるのに対して、epi-Ta では通常金属では支配的ではない DP 機構のスピン緩和[11]が支配的となっている可能性を示唆している。Rashba 効果は通常金属では観測されないが、エピタキシャルな系のようなクリーンな系では DP 機構のスピン緩和が支配的になることが Pt を用いた先行研究において示唆されている[12]。更に Pt などの複数の金属系における DP 機構の発現は理論的にもサポートされている[13]。少なくとも、従来の研究の知見においては、epi-Ta のデバイスによって得られたプロットは全て図 4.14(a)の amo-Ta に対する青色の線形フィッティングの直線状に乗るべきであるのに、実験結果はそうになっていないというのは非常に興味深い点である。ま

た、図 4.14(b)に示すように、 $\tau_{so}$ は比抵抗によってもスケールされておらず、単純な薄膜試料内の不純物散乱頻度の大小が $\tau_{so}$ を決定しているわけではないことを強く示している。では、このような epi-Ta における DP 機構の発現がどの程度妥当なものなのかを検証してゆく。DP 機構が発現するためには、構図反転対称性の破れによるバンドのスピンの軌道分裂が必要である。しかし、Ta のバルクは体心立方構造であり、もちろん 1 種類の原子から構成されている。そのため、構造反転対称性が破れている部分は界面しか存在しない。このことから、構造反転対称性が破れている界面を通過する電子数が多いほど DP 機構の寄与が強まると考えられる。界面の寄与の大きさは Ta 層の膜厚 $d_{Ta}$ と平均自由行程 $L_e$ の大小関係で決まるが、図 4.11 に示したように、Hall 測定で評価したキャリア濃度を用いて計算した $L_e$ は $d_{Ta}$ と同程度にはなっていない。この点をさらに掘り下げるため、ここで示したのとは異なる手法で $L_e$ を求めることを試みた。Fuchs-Sondheimer の理論[14]を拡張した式により、非磁性金属層の膜厚が十分厚い極限での比抵抗および平均自由行程、そしてラフネスを評価する手法が使用されている[15]。この手法により、更に膜厚の厚い epi-Ta と amo-Ta の単層薄膜を作製し、膜厚の厚い極限における。その結果を以下の図 4.15 に示す。図 4.15 中のフィッティングで用いた式は以下の式(4.5)である。

$$\rho_{Ta}(d_{Ta}) = \rho_{\infty} \left( 1 + \frac{3}{8(d_{Ta}-h)} [L_{\infty}(1-p)] \right), \quad (4.5)$$

ここで、 $\rho_{\infty}, L_{\infty}, h$ はそれぞれ膜厚が十分厚い極限における比抵抗および平均自由行程、界面のラフネスを表す。 $p$ は secularity parameter と呼ばれるパラメータであり、 $0 \leq p \leq 1$ の値を取る。 $p = 0$  の場合は界面で diffusive な散乱が生じる場合を、 $p = 1$  の場合は界面で鏡面散乱が生じる場合を表す。今回着目している Ta は金属であり、フェルミ波長がラフネスと同程度のオーダーになると考えられるため、 $p = 0$ とした。この解析によって得られた平均自由行程は、epi-Ta, amo-Ta それぞれ 47.5 nm, 3.1 nm であった。これより、バルクでは epi-Ta の方が amo-Ta よりも 10 倍以上平均自由行程が長いことが明らかになった。epi-Ta の場合の比抵抗およびラフネスは $\rho_{\infty}^{epi} = 17.2 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ ,  $h^{epi} = 0.1 \text{ nm}$  であった。一方で amo-Ta の場合の比抵抗およびラフネスは $\rho_{\infty}^{amo} = 132.1 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ ,  $h^{amo} = 1.0 \text{ nm}$  であった。ラフネスに関しては epi-Ta のものは第 3 章 3 節で示した AFM の測定結果と非常に良い一致を示す。一方で amo-Ta のラフネスはそれよりも大きな値を示した。比抵抗に関しては、図 4.2 で得られたものとよく一致している。結局、この解析によって得られた $L_{\infty}$ は epi-Ta のものの方が amo-Ta のものよりも大幅に長いことが示され、界面散乱が支配的になっている可能性が十分に存在することが示された。しかし注意しないといけないのが、ここで評価した平均自由行程はあくまでも膜厚が厚い極限における値であるということである。つまり、この膜厚が厚い極限で得られた平均自由行程が、膜厚を薄くしていった際にどのように減少してゆくのかという情報に対してアクセスすることはできないためこの解析からも DP 機構発現の起源が界面にあると断言することは困難である。



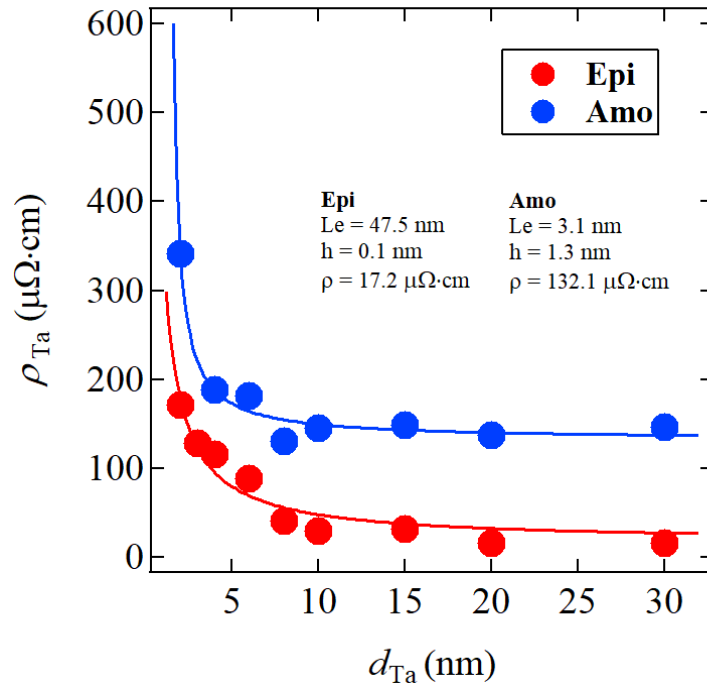


図 4.15: Fuchs-Sondheimer の理論を用いた平均自由行程の評価。赤、青のプロットはそれぞれ epi-Ta, amo-Ta の単層薄膜の抵抗を用いて計算した実験値である。赤、青の実線は式 (4.5) によるフィッティングの結果である。ここに示した比抵抗の測定は全て室温で行った。

このように、Fuchs-Sondheimer 理論を用いて評価した場合には epi-Ta の平均自由行程は Ta 層の膜厚よりも遥かに長くなっている。そのため、本系において、epi-Ta は構造反転対称性の破れている界面の Rashba 効果をより敏感に感じ、そのために DP 機構のスピンの緩和がより支配的になっている可能性があると考えられる。しかし、Ta 系における平均自由行程の電気的な見積もりは本質的に困難な部分があり、完全な DP 機構の起源解明には至らなかった。しかし、少なくとも拡散係数が小さく、散乱頻度が高いような系において、むしろスピン緩和時間が長くなるという振る舞いは従来の金属中のスピン緩和の理解とは異なる結論であり、金属系における界面の Rashba 効果の重要性を示唆する結果が得られた。

## 第4章 小括

本章では、弱反局在現象に着目した測定により、epi-Ta と amo-Ta の異なる結晶性の Ta 薄膜のスピン緩和機構を評価した。Ta 薄膜は超電導転移を示し、超電導揺らぎの効果が磁気伝導特性に重畳されていたために、通常の HLN 公式による解析が困難であった。そこで MT 項を超電導揺らぎの効果の補正項として導入することでこの問題点を解決した。測定温度は MT 項のみによる補正が妥当となるように 8 K とした。理論式を用いたフィッティングによって得られたスピン緩和長は epi-Ta のものよりも amo-Ta のものの方が短く、Ta 層の構造によって SOI の強さが異なることが示唆された。この SOI の違いの起源を解明するため、更なる解析を行った結果、amo-Ta の系は通常金属で観測される EY 機構の依存性を示したのに対し、epi-Ta では通常金属では支配的にならない DP 機構のスピン緩和が支配的であることが明らかとなった。このことから、epi-Ta では界面の構造反転対称性の破れに起因した Rashba 効果による寄与が顕著であり、界面でのスピン緩和の寄与が支配的になっていることが示唆された。これは従来の金属中のスピン緩和の知見からは考えにくい結果であり、界面の重要性が強く示唆される結果となった。

## 第4章 参考文献

- [1] S. Hikami, A. I. Larkin, and Y. Nagaoka, Prog. Theor. Phys. **63**, 707 (1980).
- [2] L. G. Aslamasov and A. I. Larkin, Phys. Lett. A **26**, 238 (1968).
- [3] K. Maki, Prog. Theor. Phys. **40**, 193 (1968).
- [4] R. S. Thompson, Phys. Rev. B **1**, 327 (1970).
- [5] K. Maki and R. S. Thompson, Phys. Rev. B **39**, 2767 (1989).
- [6] C. Y. Wu and J. J. Lin, Phys. Rev. B **50**, 385 (1994).
- [7] M. Giannouri, E. Rocoﬃllou, C. Papastaikoudis, and W. Schilling, Phys. Rev. B **56**, 6148 (1997).
- [8] Y. Niimi, D. Wei, H. Idzuchi, T. Wakamura, T. Kato, and Y. Otani, Phys. Rev. Lett. **110**, 016805 (2013).
- [9] R. J. Elliott, Phys. Rev. **96**, 266 (1954).
- [10] Y. Yafet, Phys. Rev. **85**, 478 (1952).
- [11] M. I. D'yakonov and V. I. Perel, Sov. Phys. Solid State **13**, 3023 (1972).
- [12] J. Ryu, M. Kohda, and J. Nitta, Phys. Rev. Lett. **116**, 256802 (2016).
- [13] N. H. Long, P. Mavropoulos, D. S. G. Bauer, B. Zimmermann, Y. Mokrousov, and S. Blügel, Phys. Rev. B **94**, 180406(R) (2016).
- [14] G. Fischer, H. Hoffmann, and J. Vancea, Phys. Rev. B **22**, 6065 (1980).
- [15] M. Althammer, S. Meyer, H. Nakayama, M. Schreier, S. Altmannshofer, M. Weiler, H. Huebl, S. Geprägs, M. Opel, R. Gross, D. Meier, C. Klewe, T. Kuschel, J.-M. Schmalhorst, G. Reiss, L. Shen, A. Gupta, Y.-T. Chen, G. E. W. Bauer, E. Saitoh, and S. T. B. Goennenwein, Phys. Rev. B. **87**, 224401 (2013).

## 第5章

### エピタキシャル $\alpha$ -Ta/CoFeB 構造における

### スピンホール効果の強化

第5章では室温における SMR 効果に関する研究結果をまとめる。SMR 効果は第2章で述べたように、SHA とスピン緩和長を報告されている他の測定手法と比較して簡便な測定系で評価することのできる手法である。続いて harmonic Hall 測定による測定および解析結果を示す。SMR の測定のみでは SHE および SOT の詳細な起源を推察するのは困難である。そのため、SMR 測定に対するクロスチェックとして、harmonic Hall 測定を行った。本研究における SMR 測定と harmonic Hall 測定では全く同じサンプルを使用している。そのため、互いに相補的な実験結果として考察が可能であるとともに、測定精度が高い。測定手法に依存したフィッティングパラメータの誤差に関する考察も可能であるため、各手法の長所、短所を議論する上でも有用な結果である。

#### 5.1 作製した薄膜試料の積層構造と成長条件

本節では高周波マグネトロンスパッタリング法によって成膜した薄膜試料の積層構造と成膜条件に関して述べる。初めに、本研究で用いた試料の積層構造を図 5.1 に示した。ここに示すように、Ta 層の結晶性以外の部分は全て同じ構造となっている。表 5.1, 5.2 に用いた薄膜試料の各層の成長条件をまとめた。

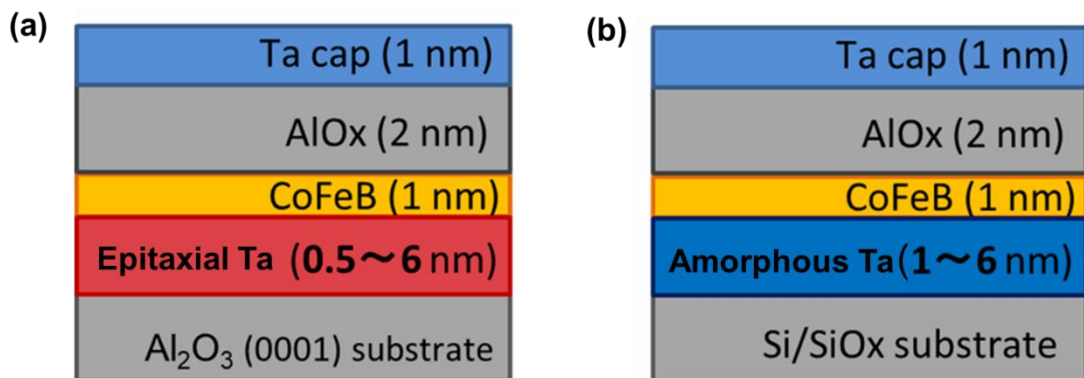


図 5.1: 本研究で測定した試料の積層構造。(a)エピタキシャル Ta 下地層のデバイス。(b)アモルファス Ta 下地層のデバイス。

表 5.1: Ta 層の成膜条件

	Epitaxial Ta (Epi-Ta)	Amorphous Ta (Amo-Ta)
基板	$\text{Al}_2\text{O}_3$ (0001)	Si(100)/SiOx
成膜温度	700°C	室温
Ar 流量	15 sccm	
T-S間距離	100 mm	
成膜圧力	0.4 Pa	
スパッタ電力	80 W	
成長レート	15 sec / nm	

表 5.2: CoFeB 層および AlOx 層の成膜条件

	$\text{Co}_{20}\text{Fe}_{60}\text{B}_{20}$	AlOx
成膜温度	室温	室温
Ar 流量	15 sccm	15 sccm
T-S間距離	100 mm	100 mm
成膜圧力	0.27 Pa	0.7 Pa
スパッタ電力	40 W	50 W
成長レート	40 sec / nm	175 sec / nm

表 5.1 にまとめたように、エピタキシャル Ta (以下 Epi-Ta)とアモルファス Ta (以下 Amo-Ta)は、基板と成長温度によって作り分けている。また、本研究で用いた強磁性体 CoFeB の組成は Co : Fe : B = 20 : 60 : 20 (%)である。

## 5.2 CoFeB 層および AlO<sub>x</sub> 層の結晶構造の評価

CoFeB 層と AlO<sub>x</sub> 層は epi-Ta と amo-Ta どちらのデバイスでも室温で同様の成膜条件で成膜を行っている。しかし下地層の Ta の結晶構造が異なるため、その上部に積層される CoFeB および AlO<sub>x</sub> 層の構造は必ずしも同様ではない可能性がある。そのため、高速電子線回折(reflection high energy electron diffraction : RHEED)像を用いて定性的な結晶構造評価を行った。その結果を図 5.2 に示す。

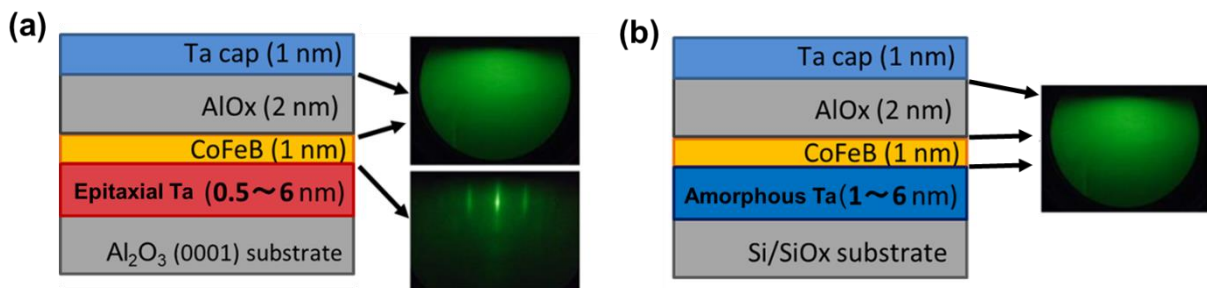


図 5.2: (a)epi-Ta および(b)amo-Ta デバイスの各層表面における RHEED 像。

CoFeB および AlO<sub>x</sub> 層表面の RHEED 像から、結晶構造はこれらの層の結晶構造はどちらもアモルファスになっていることが明らかとなり、epi-Ta, amo-Ta それぞれのデバイスで定性的に違いが無いと考えられる。

## 5.3 CoFeB 層の磁化特性の評価

各デバイスの CoFeB 層の磁化特性に関して言及する。磁化特性は PPMS の振動試料型磁力計(vibrating sample magnetometer : VSM)ユニットを用いて評価した。試料は微細加工していない薄膜を用いて、面内方向の外部磁場を掃引して行った。この測定を行った理由は、CoFeB の飽和磁化の大きさが下地の Ta 層の結晶性に対して変化している可能性があるためである。CoFeB の飽和磁化の大きさは下地層の材料に対して変化するという報告[1]がされているため、本実験の CoFeB に関しても同様に、異なる結晶性の下地層を用いた場合に CoFeB の飽和磁化が変化する可能性が考えられる。そのような下地層の結晶性に依存した飽和磁化の大きさの違いの変化があるのかどうかを明らかにすることは重要である。VSM の典型的な測定結果を図 5.3 に示す。この測定によって得られた epi-Ta, amo-Ta デバイスの CoFeB 層の飽和磁化はそれぞれ 855.4 (emu/cc), 773.8 (emu/cc) であった。これらの値は通常報告されている CoFeB の飽和磁化の大きさに対して小さな値となっているが、ここで重要な点は飽和磁化の大きさが下地層の違いによって大きく変化していないという点であり磁化の絶対的な大きさは今後の解析においてそれほど重要な意味を持たない。以下の

解析においてはここで得られた飽和磁化の値が Ta 層の膜厚に依存しないものと仮定して解析を行う。

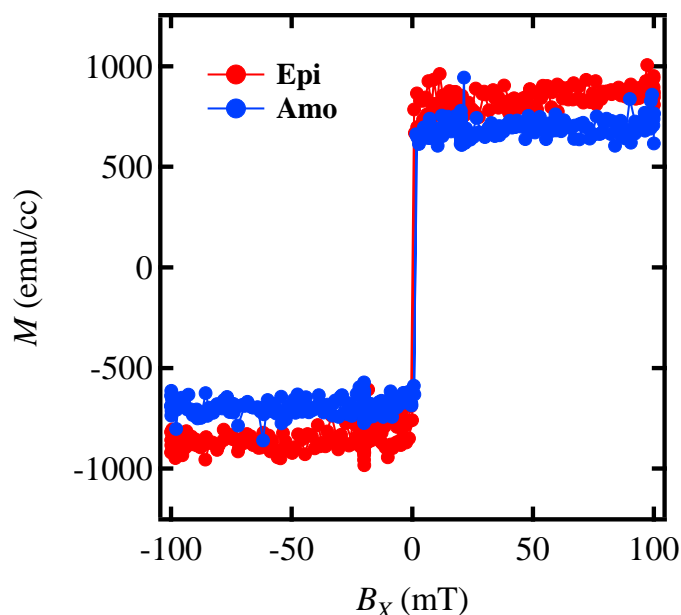


図 5.3: Epi-Ta(赤色), amo-Ta(青色)デバイスの CoFeB 層の VSM による磁化容易軸方向の磁化測定結果。ここに示しているのは線形のバックグラウンドを処理した後のデータである。

## 5.4 デバイスの基礎的な電気伝導特性

この章で示す測定では、デバイスの比抵抗を正確に知る必要がある。ここではシート伝導度の Ta 層の膜厚に対する依存性から Ta 層の比抵抗を決定する。試料全体のシート伝導度と着目する層の比抵抗の関係は以下のような式で記述される。

$$R_{Sheet}^{-1} = \frac{d_{Ta}}{\rho_{Ta}}, \quad (5.1)$$

つまり、デバイスのシート伝導率を着目する層の膜厚に対してプロットした際の傾きが、着目する層の比抵抗の逆数として得られる。このようなプロットを行った結果を epi-Ta, amo-Ta それぞれのデバイスに関して以下の図 5.4 に示す。

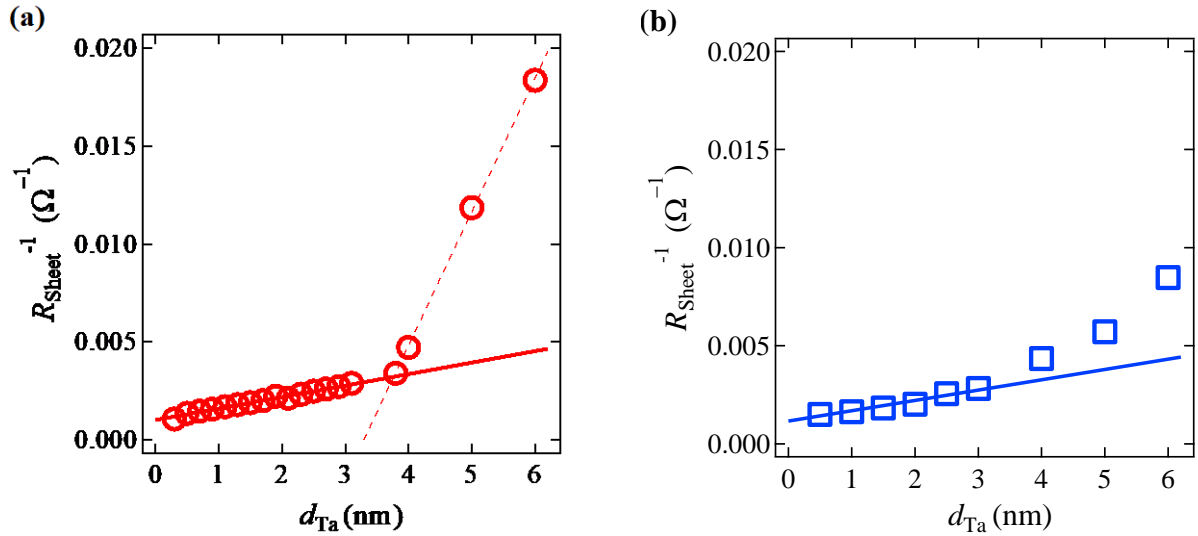


図 5.4: (a) Epi-Ta/CoFeB 構造におけるシート伝導度の Ta 層の膜厚依存性。実線は Ta 層の厚さが 4 nm 以下の領域、破線は Ta 層の厚さが 4 nm より厚い領域に対する線形フィッティングの結果である。(b) Amo-Ta/CoFeB 構造におけるシート伝導度の Ta 層の膜厚依存性。実線は Ta 層の厚さが 4 nm より薄い領域に対する線形フィッティングである。

図 5.4(a)を見ると、2つの異なる比抵抗の領域が存在していることがわかる。この理由に関しては現状ははっきりと解明できてはいないが、後に現段階での考察を述べる。続いて図 5.4(b)において、膜厚が厚い領域ではシート伝導度の値が上昇していることから、比抵抗が低下していると考えられる。これは W の薄膜において報告されているように、 $\beta$ -Ta または amo-Ta 単相薄膜に対して低抵抗な  $\alpha$ -Ta 層が混入しているためにこのようなシート伝導度の上昇が見られたものと考えられる[2]。

以上の解析により、epi-Ta/CoFeB のサンプルにおける epi-Ta 層の比抵抗は、膜厚が薄い領域で  $\rho_{\text{Ta}} = 169.0$  ( $\mu\Omega \cdot \text{cm}$ )、膜厚が厚い領域で  $\rho_{\text{Ta}} = 14.7$  ( $\mu\Omega \cdot \text{cm}$ ) が得られた。一方、amo-Ta/CoFeB のサンプルにおける amo-Ta 層の比抵抗は  $\rho_{\text{Ta}} = 190.4$  ( $\mu\Omega \cdot \text{cm}$ ) となった。amo-Ta 層の比抵抗は従来報告されている  $\beta$ -Ta や amo-Ta の比抵抗と同様の値となっている。以上のような解析を行うことにより、Ta 層の比抵抗を評価することができた。ここで epi-Ta の比抵抗が、膜厚が薄い領域と厚い領域で異なっていたことに関して、その理由を考察する。考えられる可能性として界面散乱の効果と基板近傍の転位密度の上昇が考えられるが、これらの可能性は以下のような理由から否定される。

まず初めに、界面散乱の可能性に関して議論する。界面散乱が支配的となって図 5.4(a)に示すような比抵抗変化が生じる場合には、Ta 層の平均自由行程が 4 nm 程度である必要がある。しかし、第 4 章 4 節に示したように、極低温における Hall 測定によって評価したキャリア濃度を用いて算出した epi-Ta 単層における平均自由行程は長くても 1 nm 程度であ



り、4 nm には届かない。第 4 章で示した実験結果は極低温における測定結果であるため、室温では平均自由行程がそれよりも長くなっている可能性も考えられる。しかし、後述するように Ta 層の比抵抗は温度に対して不敏感であり、また金属中のキャリア濃度が温度に対して大きな依存性を示すことは金属的なバンド構造からは考えにくい。平均自由行程はキャリア濃度と比抵抗が変数となっているため、このような比抵抗変化が 4 nm 付近で起こる起源を界面散乱の寄与に着目して説明するのは矛盾が生じる。しかし、Ta 薄膜のような重金属元素において、Hall 測定によってキャリア濃度を求め、それによって得られた平均自由行程の値が正確であるかどうかは定かではない。その理由として、薄膜であることによる状態密度のバルクからのずれや、マルチバンドの効果などが指摘されている[3]。第 4 章で示した Fuchs-Sondheimer の理論を基に評価した膜厚が厚い極限における平均自由行程は、epi-Ta, amo-Ta それぞれ 47.5 nm, 3.1 nm であった。すなわち、epi-Ta の平均自由行程は膜厚が厚い極限のものを採用したとしても、epi-Ta のデバイスの方が界面の効果が大きく寄与する可能性があるとはいえ、図 5.4(a)のシート伝導度の膜厚依存性を説明することはできない。

続いて、基板近傍の転位密度が上昇している可能性に関して述べる。第 3 章で示したように、TEM 像の解析からは sapphire 基板近傍と Ta 層の表面では、Ta 層からの電子線回折パターン of the FFT の違いを観測することができなかった。このことから、Ta 層の基板側と表面側では転位密度が目立った違いは観測されなかったため、転位密度に着目して議論を進めることもまた困難である。以上に述べたように、図 5.4(a)に示すような比抵抗変化が生じる理由は現状の実験結果から同定することが難しい。

更に異なる観点から epi-Ta 中の比抵抗の振る舞いを解明するため、epi-Ta/CoFeB のデバイスの抵抗値の温度依存性を評価した。図 5.5 に示したように、epi-Ta の膜厚が 5 nm, 6 nm のデバイスは正の抵抗温度係数を示したのに対し、膜厚 4 nm 以下のデバイスでは抵抗温度係数が負となることが明らかとなった。これは抵抗値が上昇したことによるアンダーソン局在の効果とフォノン散乱の効果と比較して大きくなっていることを示している[4,5]。また、残留抵抗値に関しても epi-Ta のデバイスでは Ta 層の膜厚を薄くしていくにつれて増加しており、epi-Ta 2 nm と amo-Ta 2 nm のデバイスはほぼ同様の値を示す。このことから、局在不純物散乱の寄与は Ta の膜厚が 2 nm 程度の領域では大きな違いは見られないと言える。以上を踏まえると、膜厚が薄い領域における epi-Ta の比抵抗増加は粒界などに由来する局在不純物散乱の寄与の変化が大きな役割を担っていると推察できる。

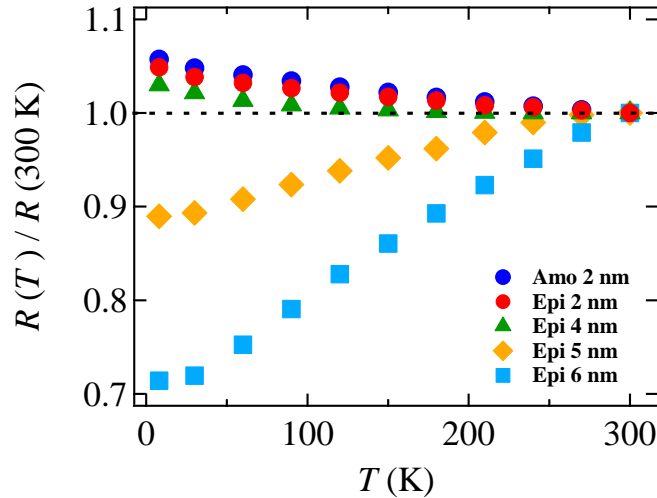


図 5.5: Epi-Ta (2, 4, 5, 6 nm)/CoFeB および amo-Ta (2 nm)/CoFeB デバイスの抵抗値の温度依存性。測定温度範囲は 8 K から 300 K までである。得られた抵抗値は 300 K における抵抗値で規格化している。各デバイスとプロットの対応は図中に示す通りである。測定には PPMS を用いた。

## 5.5 スピンホール磁気抵抗測定の設定アップ

第 3 章に示したような微細加工を用いたプロセスによって作製したデバイスを用いて室温における磁気抵抗測定を行った。磁気抵抗測定は PPMS およびローテータユニットを用いて行った。計測機器は、直流電流源：YOKOGAWA GS200, マルチメータ：Agilent 41101A を用いた。測定時の座標系の定義は以下の図 5.6 のとおりである。

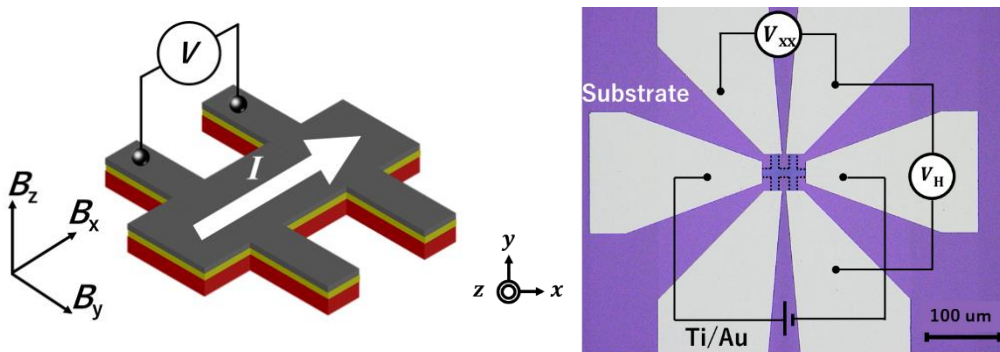


図 5.6: 作製したデバイスのイラスト(左)および光学顕微鏡写真(右)。本論文における座標系の定義と、輸送特性評価の際の端子配線も右図の写真上に示している。

以下、本章では x 軸方向に沿った外部磁場を  $B_x$  のように表現することとする。Epi-Ta, amo-Ta それぞれのデバイスの典型的な磁気抵抗測定の結果を以下の図 5.7 に示す。

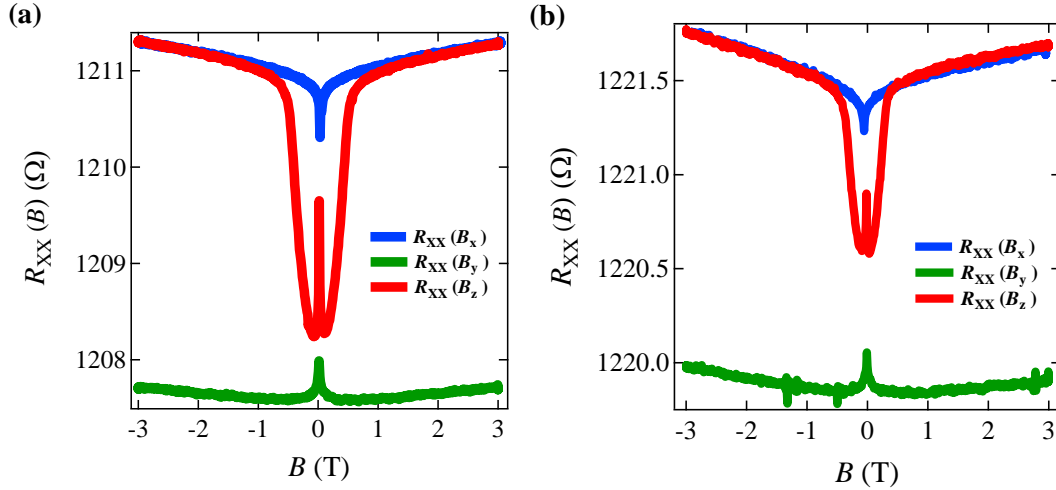


図 5.7: (a)Epi-Ta および(b)amo-Ta デバイスの磁気抵抗測定結果。Ta 層の膜厚はどちらも 2 nm のデバイスの測定結果である。各データと外部磁場のスイープ方向の関係は図中に示すとおりである。

図 5.7 に示す通り、epi-Ta と amo-Ta のデバイスで、磁気抵抗測定結果の定性的な違いは見られなかった。AMR の寄与はどちらのデバイスでも無視できるほど小さく、それに対する SMR の寄与が十分に大きいことが読み取れる。Ta 層の膜厚を変えた場合にも AMR と SMR の寄与の相対的な大小関係の違いは観測されなかった。ゼロ磁場における抵抗値が異なっている理由は、外部磁場のスイープ方向に対してドメインの入り方が異なっているためと考えられる。図 5.7 に示した epi-Ta と amo-Ta のデバイスにおける SMR 由来の磁気抵抗の大きさは、素子の抵抗値がほぼ同じであるにも関わらず、epi-Ta のものの方が 2 倍程度大きいことがわかる。このことから、epi-Ta デバイスにおける SMR の寄与の方が amo-Ta のそれよりも大きいことが期待できる。しかし、本節で示すような外部磁場をスイープする手法による SMR の大きさの評価は、デバイスごとのコンタクト抵抗の違いによるオフセットやドメイン生成のスイープ方向に対する依存性が原因で正確性に欠くという欠点がある。そのため、より測定に万全を期すために、次節に示すような角度依存磁気抵抗測定をクロスチェックとして行う必要がある。また、同じ測定の対称性で観測される SMR 以外の磁気抵抗の寄与として、古典的磁気抵抗およびハンル磁気抵抗(Hanle magneto resistance : HMR)[3]が挙げられる。これらはどちらも磁場に対して 2 次に比例する磁気抵抗成分であるが、図 5.7 から明らかなように、高磁場においてもそのような成分は観測されなかったため、本研究では無視することとする。

## 5.6 角度依存磁気抵抗測定

前節で示したように、外部磁場スイープによる磁気抵抗測定から評価した SMR や AMR の寄与は、ドメインやコンタクトの影響による抵抗値のオフセットによって定量的な正確さを欠いてしまう可能性があるため、異なる測定手法によってクロスチェックを行うことが重要である。そのクロスチェックの手法として一般的に用いられるものが角度依存磁気抵抗測定 (angular dependent magneto resistance : ADMR) である。ADMR 測定は、異方性磁場よりも大きな値の外部磁場をデバイスに印加し、XY, YZ, ZX それぞれの面内で磁場(またはデバイス)を回転させることで、例えば XY 平面における ADMR 測定であれば、X 方向および Y 方向の磁場スイープによる磁気抵抗測定で得られた高磁場における磁気抵抗差が、得られる ADMR 測定の振幅に対応する。今後の解析では、この ADMR 測定によって得られた MR の値を用いて解析を行っていく。初めに、以下の図 5.8 に測定を行う際のセットアップとそれぞれの測定の定義を示す。

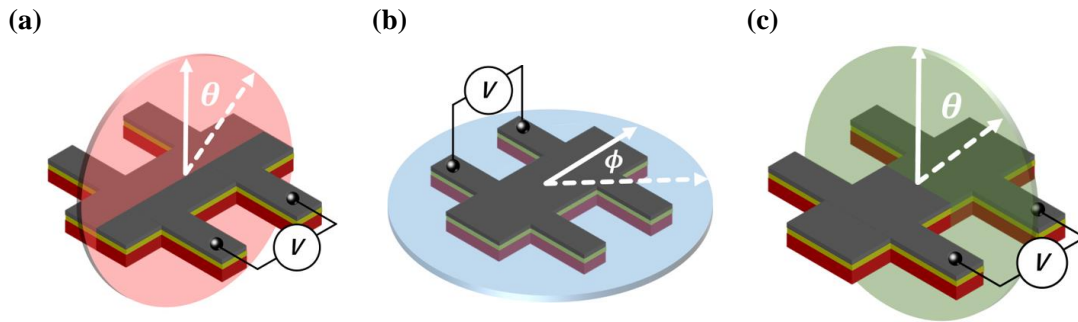


図 5.8: ADMR 測定のセットアップの概念図と角度の定義。(a)XZ スキャン(b)XY スキャン (c)YZ スキャンの測定イメージを示し、(a),(b),および(c)における赤、青、緑の円盤は印加されている外部磁場が回転する面を表現している。

ここで、 $\theta$ ,  $\phi$  はそれぞれ膜面垂直方向を  $0^\circ$  とした極角、電流印加方向を  $0^\circ$  とした方位角である。ADMR 測定の典型的な測定結果を図 5.9 に示す。定性的には、XZ スキャンで得られた MR の振幅は AMR の大きさに、YZ スキャンで得られた振幅は SMR の大きさに対応し、XY スキャンは AMR、SMR 両方の成分を含んでいる。以上のような AMR, SMR の寄与の角度依存性を現象論的に示したものが式(5.2)である。

$$R_{xx}(\theta, \phi) = R_0 + \Delta R_{\text{AMR}} \sin^2 \theta \cos^2 \phi + \Delta R_{\text{SMR}} \sin^2 \theta \sin^2 \phi, \quad (5.2)$$

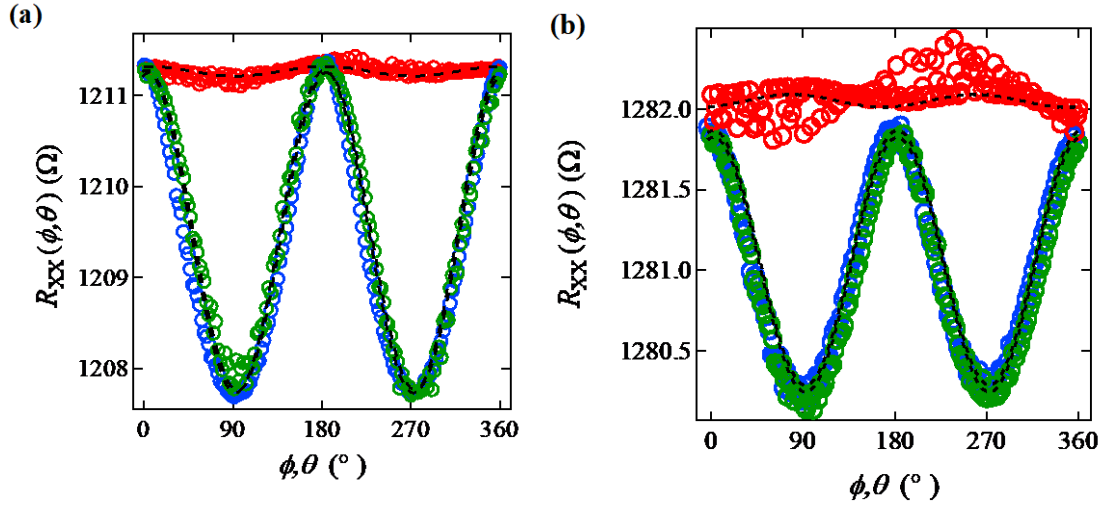


図 5.9: (a)epi-Ta および(b)amo-Ta の ADMR 測定の結果。赤色、青色、緑色のプロットはそれぞれ XZ スキャン、XY スキャン、YZ スキャンによる測定結果を示す。黒い破線で示しているのは式(5.2)による測定結果に対するフィッティングの結果である。

ここで、 $R_0$ ,  $\Delta R_{\text{AMR}}$  および  $\Delta R_{\text{SMR}}$  は、それぞれ抵抗値のオフセット、AMR の寄与による磁気抵抗成分、SMR の寄与による磁気抵抗成分を表す。図 5.9 から明らかなように、測定結果は式(5.2)によってよく再現されることがわかる。また、ADMR の定性的な特性は epi-Ta と amo-Ta のサンプルで大きな違いは無いことがわかる。AMR によるの振幅はどちらも非常に小さく、ほぼ無視できる。この ADMR の YZ スキャンに着目し、SMR の寄与を評価するために、YZ スキャンを Ta の膜厚を変えたサンプルで系統的に評価した。Epi-Ta, amo-Ta それぞれのデバイスにおける YZ スキャンの Ta 層の膜厚依存性を以下の図 5.10 に示す。この結果によると、epi-Ta, amo-Ta どちらのタイプのデバイスも膜厚を増加していくと ADMR が大きくなってゆき、Ta 層の膜厚が 2 nm 付近で ADMR が最大となり、そこから ADMR が減少していくような挙動を示している。この挙動は通常の SMR 測定の膜厚依存性に見られるものと同様である。Ta 層の膜厚がスピン緩和長よりも薄い領域ではスピンの多重散乱により正味のスピン流が減少するので、SMR が小さくなる。一方で Ta 層の膜厚が厚い場合には、電流の分流効果によって SMR が見かけ上小さく見える。膜厚 2 nm のサンプルを比較してみると、epi-Ta の ADMR の方が amo-Ta のものよりも 2 倍程度大きいことがわかる。このことから、epi-Ta のサンプルでは amo-Ta のサンプルよりも SHA が大きいことが期待される。より定量的に SHA や  $\lambda_s$  を議論するために、理論式を用いたフィッティングによる解析を行った。

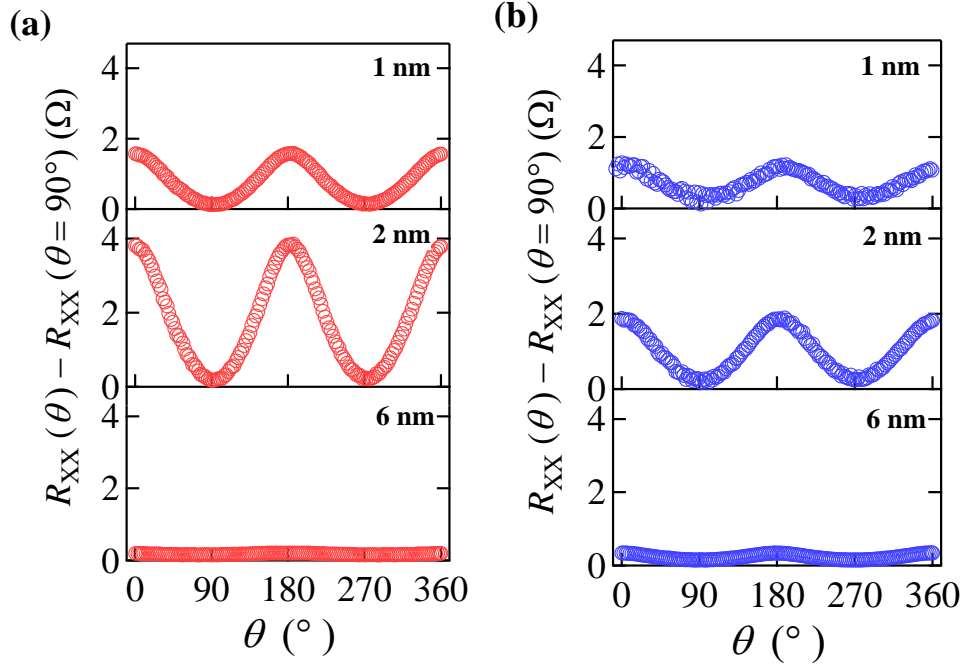


図 5.10: (a)epi-Ta および(b)amo-Ta の YZ scan による ADMR 測定を Ta 層の膜厚の違いに関して示した結果。グラフ上段、中段、下段はそれぞれ Ta 層の膜厚が 1 nm, 2 nm, 6 nm のデバイスを用いた測定によって得られた YZ scan の ADMR である。

## 5.7 磁気抵抗測定の解析

図 5.11 に、実験で得られた SMR 比の膜厚依存性を示した。SMR の定義は以下のとおりである。

$$\text{SMR}(\%) = \frac{\Delta R_{\text{SMR}}}{R_0} \times 100 \quad (5.3)$$

ここで、 $R_0 = R_{XX}(B = 0)$  はゼロ磁場における素子の抵抗値である。また、解析に用いた理論式を再び式(5.4)として以下に示す[2]。代入したパラメータとして、スピンミキシングコンダクタンスの実部の値を  $\text{Re}[G_{\text{MIX}}] = 10^{19} \text{ } (\Omega^{-1}\text{m}^{-2})$  とした。また、CoFeB 層のスピン偏極率、比抵抗、スピン緩和長をそれぞれ  $P = 0.72, \rho_{\text{FM}} = 160 \text{ } (\mu\Omega\text{cm}), \lambda_{\text{FM}} = 1 \text{ (nm)}$  とした。

$$\frac{\Delta R_{\text{SMR}}}{R_0} = -|\theta_{\text{SH}}^{\text{smr}}|^2 \frac{\lambda_{\text{Ta}}}{d_{\text{Ta}}} \frac{\tanh^2(\frac{d_{\text{Ta}}}{2\lambda_{\text{Ta}}})}{1+\xi} \left[ \frac{g_{\text{R}}}{1+g_{\text{R}} \coth(\frac{d_{\text{Ta}}}{\lambda_{\text{Ta}}})} - \frac{g_{\text{F}}}{1-g_{\text{F}} \coth(\frac{d_{\text{Ta}}}{\lambda_{\text{Ta}}})} \right], \quad (5.4)$$

図 5.11 を見ると、プロットの振幅は epi-Ta のものの方が amo-Ta のものと比較して大きいことが明らかである。また、ピーク位置に関して epi-Ta のものの方が、膜厚が薄い領域側にシフトしており、スピン緩和長が短いことを示唆している。式(5.4)によるフィッティング結果および比抵抗をまとめたものを表 5.3 に示す。

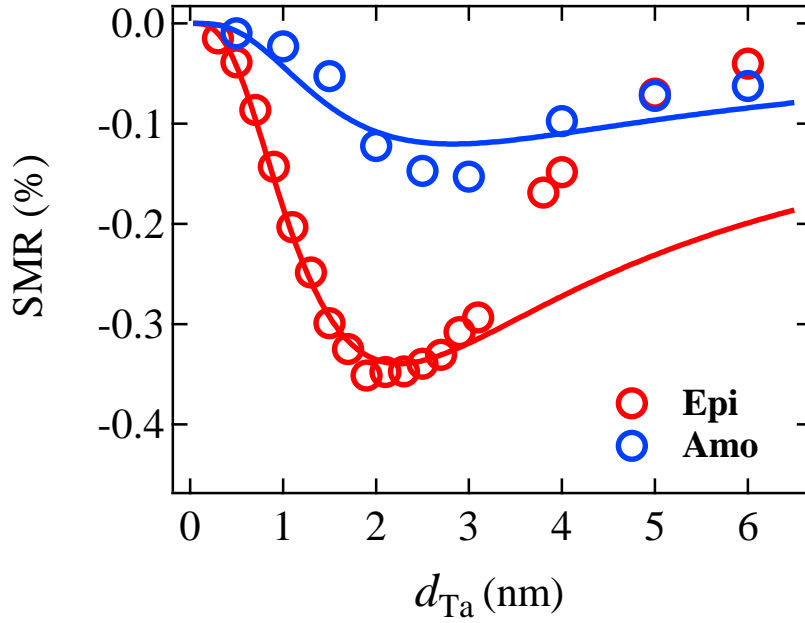


図 5.11: SMR の大きさの Ta 層の膜厚依存性。Epi-Ta(赤丸)、amo-Ta(青丸)のデータプロットに対するフィッティング(それぞれ赤、青の実線)。

表 5.3: SMR 測定によって得られたフィッティングパラメータおよび比抵抗

Sample	$\rho_{\text{Ta}}(\mu\Omega \cdot \text{cm})$	$\lambda_{\text{Ta}}(\text{nm})$	$ \theta_{\text{SH}}^{\text{smr}} $
Epi-Ta	169.0	0.79	0.15
Amo-Ta	190.4	0.99	0.09

表 5.3 に示すように、定性的な予想の通り、epi-Ta のサンプルは amo-Ta のサンプルと



比較して 1.5 倍程度大きな SHA を示すことが明らかとなった。今回得られた epi-Ta の SHA はこれまで Ta/CoFeB 系で報告されていたものの中で最大の値である。一方で、得られた amo-Ta の SHA は先行研究で報告されているものとよく一致する。また、スピン緩和長に関しても epi-Ta のサンプルの方が短い値が得られた。以上の実験事実から、epi-Ta 中での SHE が強化されていると考えられる。

## 5.8 余剰の磁気抵抗効果に関する考察

SMR 測定より評価した epi-Ta デバイスの SHA が amo-Ta のものよりも大きくなった理由について考察していく。強磁性体そのものが、SMR 由来の ADMR の YZ スキャンと同様の対称性のシグナルを生じるという報告 [6] もされているため、そのような余剰の寄与が無い事を証明するために膜厚 3 nm の CoFeB の単膜を用いた ADMR 測定を行った。CoFeB の膜厚を 3 nm とした理由は、不連続膜となることを防ぐという点と、先行研究[6]において、厚い膜厚のものの方が、ADMR が大きく出ることが示されていたため、より不利な条件で実験を行い、CoFeB 由来のシグナルが十分に小さいことを担保する点である。ADMR 測定の結果を以下の図 5.12 に示す。

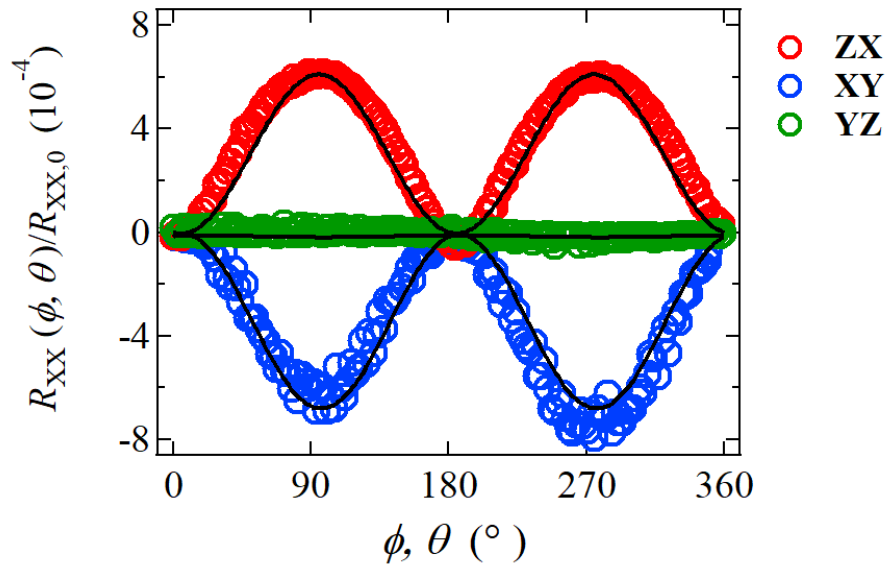


図 5.12: SiO<sub>x</sub> 基板/CoFeB (3 nm)/AlO<sub>x</sub>(2 nm)/Ta (1 nm)のデバイスによる ADMR の測定結果。データプロットの色とスキャン方向の対応は図中に示すとおりである。黒線は式(5.2)によるフィッティングを表す。

図 5.12 に示すように、YZ スキャンによる振幅は無視できるほど小さいため、報告され



ているような SMR と同様の対称性の寄与が含まれているということは考えにくい。  
unidirectional SMR [7] による測定であれば界面由来の寄与に言及できる可能性があるが、  
本研究では SMR に関してそこまでの評価は行わず、harmonic Hall 測定で得られたデータ  
を基に、界面の寄与に言及することとした。SMR 測定は単純な磁気抵抗測定であるため  
に、現在の理論では考慮していない余剰の効果が重畳したシグナルを測定している可能性  
も否定できない。以上のような理由から、次節で示す harmonic Hall 効果からの解析も踏  
まえて相補的な実験結果を基に考察を行う。

## 5.9 ハーモニックホール測定のセットアップ

続いてハーモニックホール測定の実験結果を示す。本節では、ハーモニックホール測定の  
セットアップに関して述べる。はじめに、ハーモニックホール測定の概念図を以下の図 5.13  
に示す。

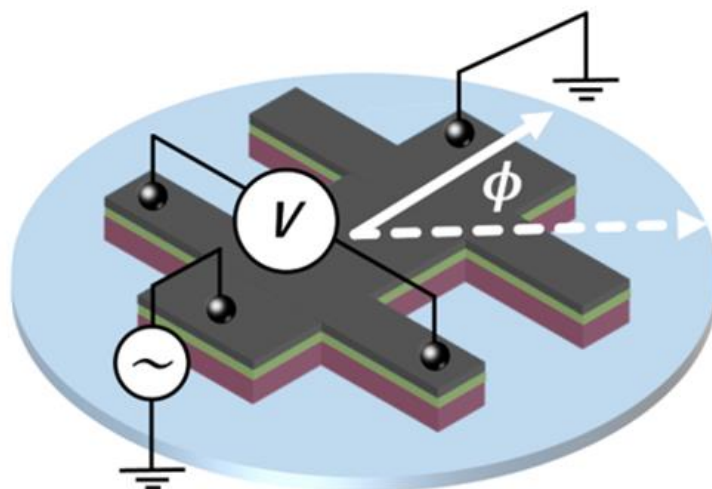


図 5.13: Harmonic Hall 測定のセットアップの概念図と角度の定義。青の円盤は印加されて  
いる外部磁場が回転する面を表現している。

また、測定時の回路図は以下の図 5.14 に示す通りである。2 台のロックインアンプ  
(Stanford Research model 830) を用いて主成分および第二高調波成分を検出し、もう 1 台  
のロックインアンプ(Stanford Research model 810)を用いて参照抵抗(抵抗値 20 Ω)の両端  
で発生する電圧を検出している。交流電圧源 (Wave Factory 1864) を用いて、10 Hz の交

流電圧を印加した。このような測定回路を用いて測定を行うことにより、ハーモニックホール測定の解析に必要なデータセットを手に入れることができる。

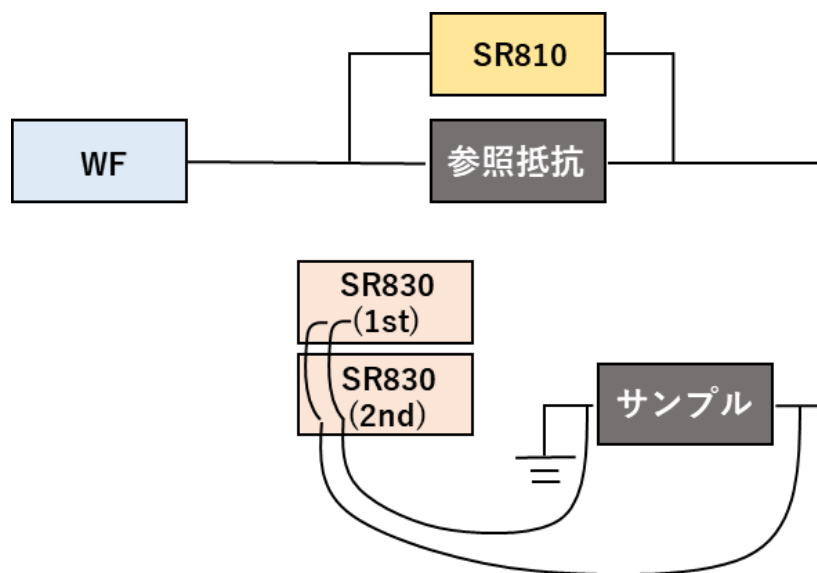


図 5.14: ハーモニックホール測定の回路図

## 5.10 ハーモニックホール測定の生データとその解析

ハーモニックホール測定は、SMR 測定と同様にホールバー構造を作成し、素子に交流電流を印加してホール測定を行う。ただし、SMR の測定とは異なり、ハーモニックホール測定は磁気抵抗測定ではないので印加電流値が測定結果に顕に影響する。交流電圧発生器には当然発振可能な交流電圧値の上限があるため、所望の印加電流密度が得られるよう素子構造の工夫が必要である。一般的にハーモニックホール測定において明瞭な測定信号を観測するためには  $10^7$  (A/cm<sup>2</sup>) オーダーの電流密度が必要とされるため、この基準を参考にして素子形状を決定すると良い。本研究で行った面内磁化の系に対するハーモニックホール測定は、2つの手法によって解析を行った。1つ目は、一定値の面内の外部磁場を印加し、外部磁場の印加方向を  $0^\circ$  から  $360^\circ$  まで変化させることで DL field および FL field を評価する方法である。この方法では、DL field と FL field をどちらも同時に評価することができるが、面内の磁気異方性が完全に等方的でない場合にはこの手法を適用することはできない。2つ目は、外部磁場を面内の  $45^\circ$  の方向に印加し、異方性磁場よりも十分に高磁場の範囲を用いて DL field のみを解析する手法である。式を見ると、 $\phi = 45^\circ$  を代入すると、FL field を含む第二項が消去されることがわかる。よって、この測定では DL field と熱

勾配の効果だけを正確に評価することが可能である。この手法では面内の磁化特性が等方的でない場合にも適用でき、測定の実用範囲が広いが、FL field を評価できないという問題点がある。

ここで、面内磁化の系におけるハーモニクホール測定の解析手順について述べる。初めに素子に適切な電流密度が得られるような電圧を印加する。そして  $V_\omega$  と  $V_{2\omega}$  を同時に測定しながら、面内に一定の磁場を印加した状態で素子を回転する。すると以下の図に示すような  $V_\omega$  と  $V_{2\omega}$  (ここでは印加電流値を用いて縦軸の値を Hall 抵抗値  $R_\omega$ ,  $R_{2\omega}$  としている) が磁場印加角度  $\phi$  に対して得られる。図から明らかなように、面内磁場の大きさを大きくしていくにつれて  $R_{2\omega}$  の振幅が減少していることがわかる。これは外部磁場を大きくしていくにつれて磁化のコーンアングルが小さくなり、SOT による磁化の振れ角が小さくなっていくことに対応している。このことから、 $R_{2\omega}$  の振幅が外部磁場の大きさを大きくしていくにつれて減少していくような傾向が見られる場合には有限の SOT が存在することが予想される。続いて、得られた生データを  $\cos\phi$  と  $(\cos\phi + \cos 3\phi)$  の成分に分離することを考える。この式はどちらの項にも  $\cos\phi$  が含まれているため、一見分離が不可能なようにも見えるが、係数の違いが拘束条件となってこれらの項の分離を可能にしている。 $\cos\phi$  と  $(\cos\phi + \cos 3\phi)$  の成分の分離を行い、得られた係数をそれぞれ  $(B_{\text{ext}} + B_k)^{-1}$  および  $B_{\text{ext}}^{-1}$  に対してプロットし、このグラフの傾きがそれぞれ  $B_{\text{DL}}$  および  $(B_{\text{FL}} + B_{\text{Oe}})$  を含む成分として得られる。 $\cos\phi$  の成分の係数のグラフの切片は熱勾配の影響によって生じる項に対応している。以上のようにして求められた  $B_{\text{DL}}$  および  $(B_{\text{FL}} + B_{\text{Oe}})$  を電流密度で規格化することにより、単位電流密度当たりの電流誘起有効磁場の値を定量評価することができる。以上のような解析を非磁性金属層の膜厚を変化させて行う事により、有効的な電流誘起有効磁場の最大値とスピン緩和長を定量的に求めることが可能となる。更に、強磁性層の磁化を評価することによって  $\theta_{\text{SH}}$  を求めることができる。ここに、第2章で示した Hall 抵抗の主成分と第二高調波成分の外部磁場の印加角度依存性を改めて式(5.5), (5.6)としてそれぞれ再掲する。

$$R_\omega = R_{\text{AHE}} \cos\theta_0 + R_{\text{PHE}} \sin^2\theta_0 \sin 2\phi_0, \quad (5.5)$$

$$R_{2\omega} = -\left(R_{\text{AHE}} \frac{B_{\text{DL}}}{B_{\text{ext}} + B_k} + R_{\text{ANE}}\right) \cos\phi + R_{\text{PHE}} \frac{B_{\text{FL}} + B_{\text{Oe}}}{B_{\text{ext}}} (\cos\phi + \cos 3\phi), \quad (5.6)$$

本実験におけるハーモニクホール測定では、2つの異なる手法で有効磁場の大きさを評価していく。1つ目は一定の外部磁場を印加し、外部磁場中でサンプルを回転させて DL field および FL field を評価する手法( $\phi$  スキャン)、2つ目は外部磁場の印加方向を  $\phi = 45^\circ$  に固定し、外部磁場をスイープする手法( $45^\circ$  スキャン)である。これらを相補的に用いて、DL field, FL field の値を正確に評価する。本節では、これらの測定手法の典型的

な生データを示し、理論式で予測されるとおりの対称性のシグナルが測定できていることを確認する。

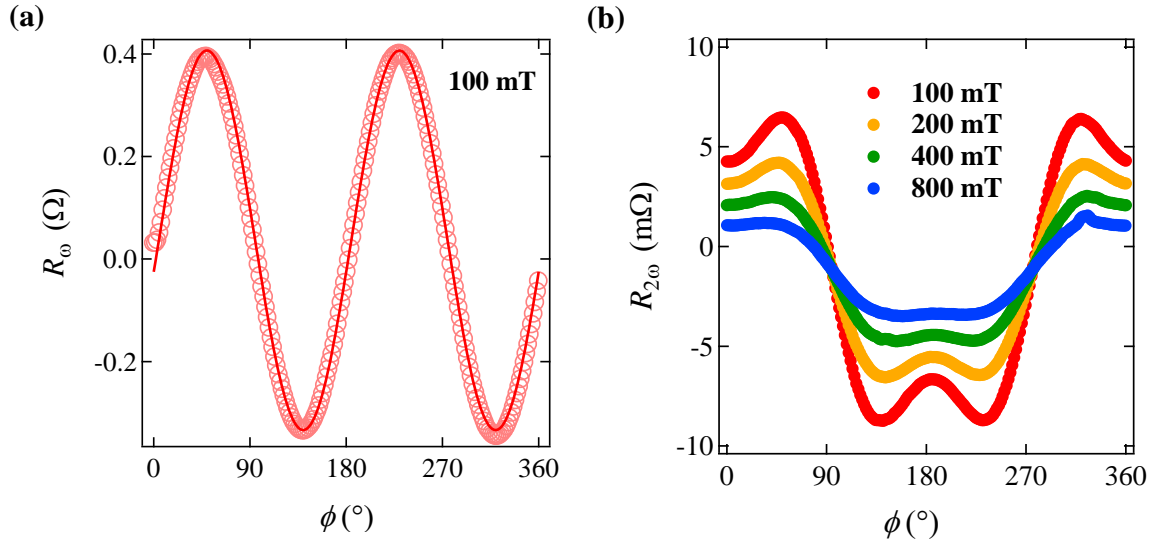


図 5.15: Epi-Ta (2 nm)/CoFeB のデバイスにおける異常ホール効果の(a)外部磁場強度 100 mT 印加時の主成分および(b)第二次高調波成分の外部磁場強度依存性。(a)における赤の実線は式(2.3)によるフィッティング結果である。(b)におけるデータプロットの色の違いは面内磁場強度に対応しており、磁場強度とプロットカラーの対応は図中に示すとおりである。

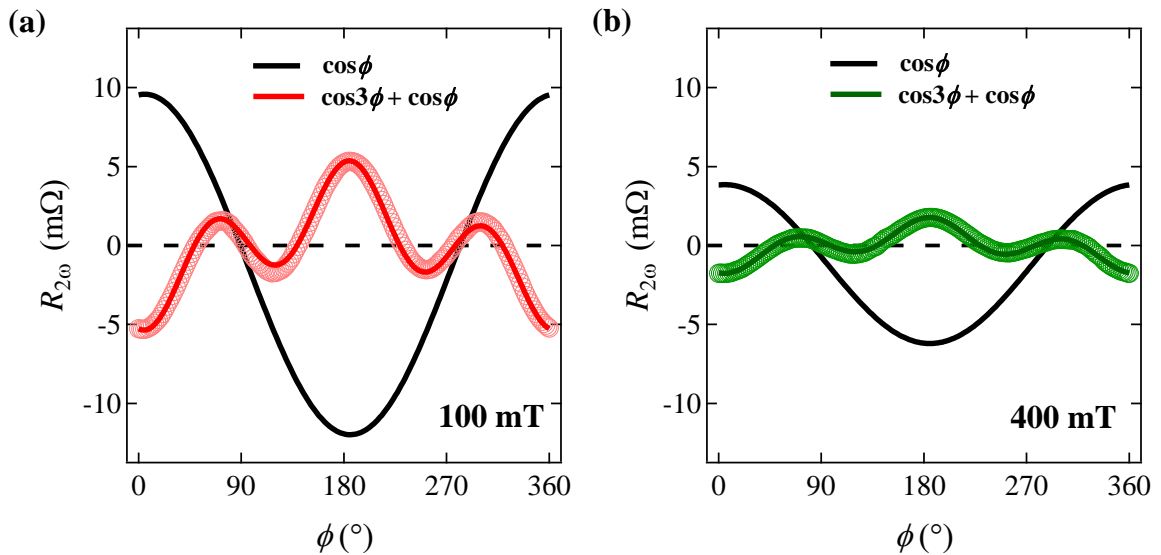


図 5.16: 異常ホール効果の第二高調波成分を  $\cos\phi$  と  $(\cos\phi + \cos3\phi)$  の成分に分離したもの。データは epi-Ta (2 nm)/CoFeB のサンプルより取得したものである。(a),(b) はそれぞれ面内磁場強度が 100 mT および 400 mT の際に得られたデータである。赤、緑の丸プロットはそれぞれの実験データを示し、黒の実線は  $\cos\phi$  の成分を、各色の実線は  $(\cos\phi + \cos3\phi)$  の成分を表す。

初めに、epi-Ta (2 nm)/CoFeB のデバイスにおける $\phi$ スキンの測定によって得られた主成分シグナルおよび第二次高調波成分から計算した異常ホール抵抗の生データを図 5.15 に示した。図 5.15(a)からわかるように、Hall 抵抗の主成分シグナルは式(5.5)によってよく表されることから、面内方向での磁化特性が等方的になっており、特定の磁化容易軸は存在しないことがわかる。本実験で用いているサンプルは面内磁化のサンプルであるから、式(5.5)において $\theta = 90^\circ$ と仮定して第 1 項を無視できるとして、 $R_{\text{PHE}}$ を求めることができる。また図 5.15(b)から、異常ホール効果の第二次高調波成分は外部磁場に依存する成分を明らかに持っており、有限の DL field または FL field が存在することが見て取れる。図 5.15(b)で得られたような異常ホール効果の第二次高調波成分は、図 5.16 に示すように  $\cos\phi$  と  $(\cos\phi + \cos3\phi)$  の成分に分離することができる。図 5.16 の 2 つのグラフの縦軸はどちらも同一スケールであるから、面内磁場強度が強くなるにつれて  $\cos\phi$  および  $(\cos\phi + \cos3\phi)$  の成分はどちらも小さくなっていることがわかる。 $\cos\phi$  および  $(\cos\phi + \cos3\phi)$  の成分のうち、面内磁場強度に依存する成分はそれぞれ  $B_{\text{DL}}$ ,  $B_{\text{FL}}$  のみであるから、有限の DL field, FL field が存在することが期待される。このような生データに対するフィッティングを行うことにより、 $\cos\phi$  および  $(\cos\phi + \cos3\phi)$  成分の係数を抜き出すことができた。この解析によって得られた  $\cos\phi$  および  $(\cos\phi + \cos3\phi)$  成分の係数を、外部磁場強度の逆数に対してプロットしたものを以下の図 5.17 に示す。

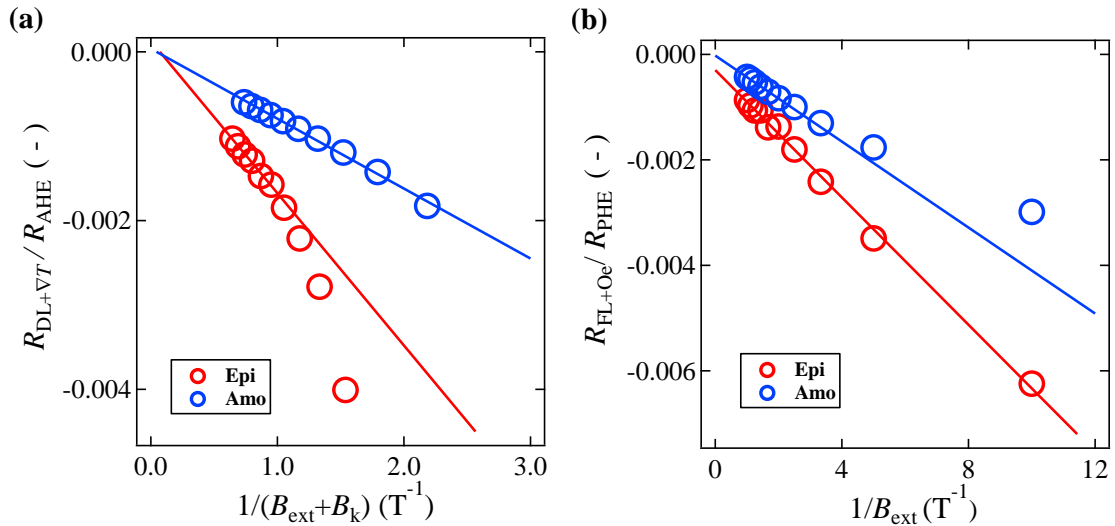


図 5.17: 異常ホール効果の第二高調波成分を(a) $\cos\phi$  および (b) $(\cos\phi + \cos3\phi)$ の成分に分離した際の係数をそれぞれ  $R_{\text{AHE}}$  および  $R_{\text{PHE}}$  で割り、外部磁場強度の逆数に対してプロットしたもの。(a)は DL field および熱勾配の効果を含んでおり、(b)は FL field および Oersted 磁場の効果を含んでいる。データは epi-Ta (2 nm)/CoFeB のサンプルより取得したものである。

このプロットの傾きが DL field および FL field に対応する。ここで注意しなくてはならないのが図 5.17(a)のプロットを行うときには外部磁場強に  $B_k$  を含める必要があるという点である。DL field は面内磁化に対して面直成分を持たせるような方向に作用するため、面直方向の異方性磁界の成分が強いほど、見かけの DL field は小さくなる。このような寄与を補正するために  $B_k$  を見積もる必要がある。 $B_k$  および  $R_{AHE}$  は以下の図 5.18 に示すような手法で評価した。デバイスに対して面直方向に外部磁場を印加し、異常ホール抵抗を測定することで図 5.18 のシグナルを得ることができる。この測定で得られたデータの最大値と最小値の差を  $R_{AHE}$ 、高磁場部分と低磁場部分のそれぞれの線形領域に対する線形フィッティングの交点の x 座標を  $B_k$  と定義している。harmonic 測定と併せて異常ホール効果の測定も行い、解析に必要なパラメータをそろえることができた。本研究では DL field を定量的に正確に評価することに主眼を置いているため、ここで示した  $\phi$  スキャンの測定手法とは異なる手法で DL field を評価し、クロスチェックを行う事は重要である。そこで、DL field を定量評価する第二の手法として  $45^\circ$  scan を行った。この評価手法では、第 2 章で述べたとおり、DL field および熱勾配に起因する効果のみを測定し、FL field に由来する効果を完全に排除することができる。 $45^\circ$  scan の測定結果の生データを図 5.19 に示す。

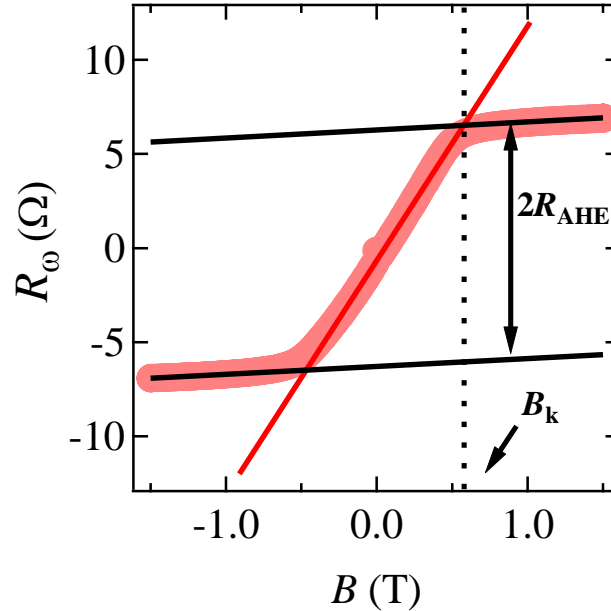


図 5.18: 異常ホール抵抗の主成分の面直の外部磁場に対する依存性。黒線および赤線はそれぞれ高磁場領域および低磁場領域に対する線形フィッティングである。データは epi-Ta (2 nm)/CoFeB のサンプルより取得したものである。

図 5.19(a)を見ると、ゼロ磁場付近で発散的な挙動を示す第二次高調波のシグナルが得られる。このシグナルの高磁場部分に着目し、得られた第二次高調波成分の大きさを外部磁場の逆数に対して再度プロットすると図 5.19(b)のようなプロットが可能である。図 5.19(b)には図 5.17(a)のデータも同時にプロットしているが、これらは非常によく一致していることがわかる。このことから、2つの異なる測定手法によって得られた  $\cos\phi$  の項の係数の成分の外部磁場強度に対する依存性が2つの異なる評価方法で一致していることが明らかとなったため、この解析から得られる DL field の値は客観的に正確なものであると考えることができる。式(5.6)から明らかなように、DL field, FL field の大きさは図 5.17 の線形フィッティングの傾きに対応しているため、線形フィッティングによって得られたこれらの有効磁場の値を印加電流密度の値で割ったデータを用いて定量的に電流誘起有効磁場の強度を比較した。得られた DL field, FL field の強度の Ta 層の膜厚依存性を図 5.20 に示す。

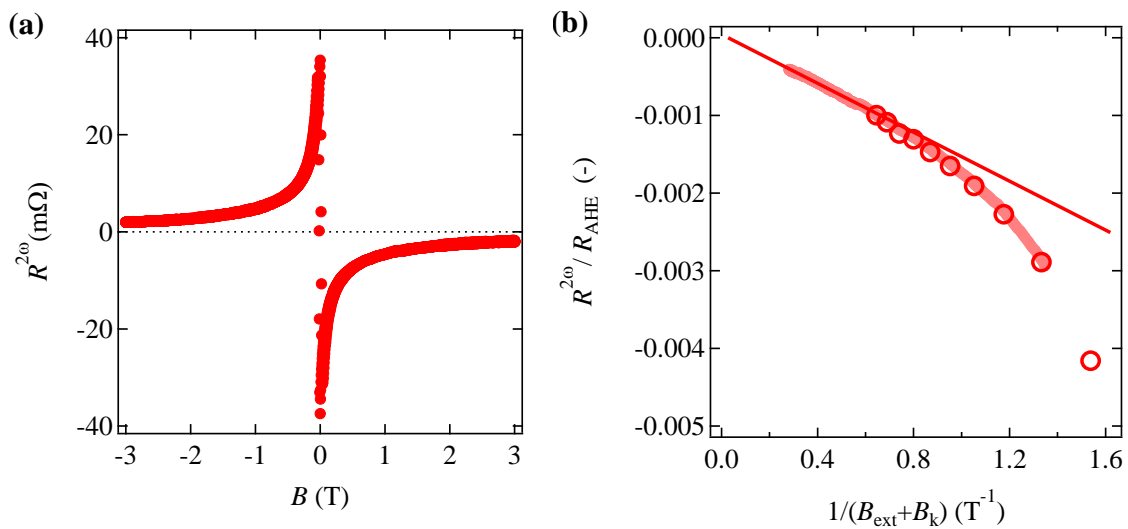


図 5.19: (a)異常ホール効果の第二次高調波成分を $\phi = 45^\circ$ 方向に外部磁場を掃引して取得したデータ。(b)(a)で得た正の磁場領域のデータを外部磁場強度の逆数に対してプロットしたもの。赤丸は  $\phi$ -スキャンによって得られたデータであり、これらはよく一致することがわかる。データは epi-Ta (2 nm)/CoFeB のサンプルより取得したものである。



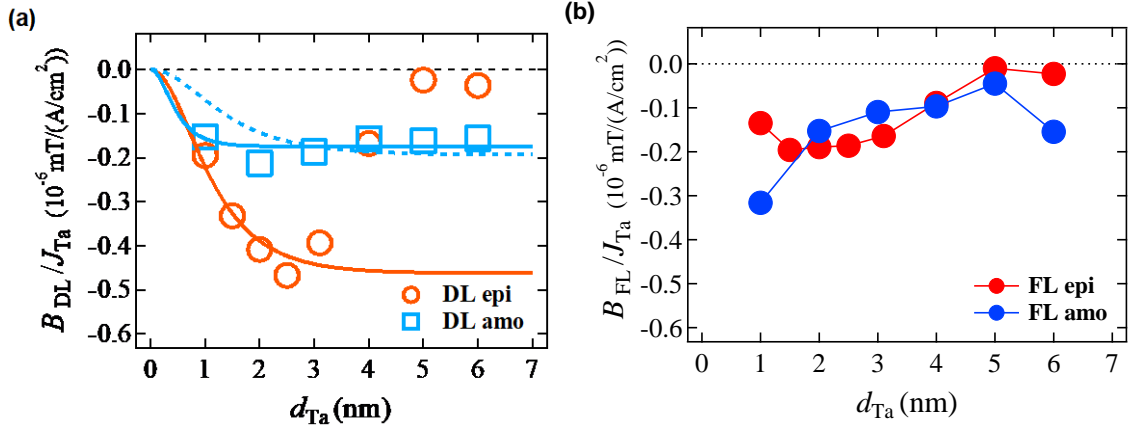


図 5.20: 得られた(a)DL field および(b)FL field の電流誘起有効磁場強度を  $j_{Ta}$  で割ったものを Ta 層の膜厚に対してプロットしたもの。(a)中の実線は、式(5.7)によるフィッティングである。オレンジ色の実線は epi-Ta の膜厚 4 nm 未満のデータに対してフィッティングしたものである。水色の実線は amo-Ta のすべてのデータに対してフィッティングしたものである。水色の破線は  $\lambda_{Ta}$  をフィッティングパラメータではなく、SMR 測定で得られた  $\lambda_{Ta} = 0.99 \text{ nm}$  を定数として式(5.7)に取り込んでフィッティングを行った結果である。(b)に関して、エルステッド磁場の寄与を補正後の値を用いた。

図 5.20(a)に示した Ta 層の膜厚依存性はどちらも以下の式(5.7)でよく再現される。

$$\frac{B_{DL}(d_{Ta})}{j_{Ta}} = \frac{B_{DL,MAX}}{j_{Ta}} \left( 1 - \text{sech} \left( \frac{d_{Ta}}{\lambda_{Ta}} \right) \right), \quad (5.7)$$

式(5.7)を用いたフィッティングにより、 $B_{DL,MAX}$  と  $\lambda_{Ta}$  をフィッティングパラメータとして得ることができる。ここで  $B_{DL,MAX}$  は DL field の最大値である。更に、得られた  $B_{DL,MAX}$  を用いてスピホール角  $\theta_{SH}^{\text{hrm}}$  を見積もることができる。

$$\theta_{SH}^{\text{hrm}} = \frac{2eM_s t_F}{\hbar} \frac{B_{DL,MAX}}{j_{Ta}}, \quad (5.8)$$

式(5.7)および(5.8)を用いて得られた  $\theta_{SH}^{\text{hrm}}$  および  $\lambda_{Ta}$  を表 5.4 にまとめた。以上がハーモニックホール測定によって得られた実験データおよびその解析結果である。



表 5.4 Harmonic Hall 測定によって得られたフィッティングパラメータおよび比抵抗

Sample	$\rho_{Ta} (\mu\Omega \cdot \text{cm})$	$\lambda_{Ta} (\text{nm})$	$\theta_{SH}^{\text{hrm}}$
Epi-Ta	169.0	0.79	-0.12
Amo-Ta	190.4	0.33	-0.04

### 5.11 ハーモニックホール測定 of 考察

はじめに、得られた DL field の Ta 層の膜厚依存性に関して議論する。式(5.7)によるフィッティングで得られた単位電流密度あたりの DL field の最大値は、epi-Ta のもので  $B_{DL,MAX}/j_{Ta} = -4.4 \pm 0.2$  ( $10^{-6} \text{ Oe}/(\text{A}/\text{cm}^2)$ )、amo-Ta のもので  $B_{DL,MAX}/j_{Ta} = -1.9 \pm 0.3$  ( $10^{-6} \text{ Oe}/(\text{A}/\text{cm}^2)$ ) であった。このことから、epi-Ta のサンプルの方が amo-Ta のサンプルよりも大きな DL field を示すという結論が得られる。ただし、epi-Ta のデータに関しては Ta 層の膜厚が 4 nm 以上のサンプルのデータをフィッティングの対象から外しており、すべてのデータを含めてフィッティングすると実験データは上手く再現することはできない。この結果は epi-Ta が膜厚領域に応じて異なる比抵抗を示すことを反映している。従来  $\alpha$ -Ta は低抵抗で、SHA は小さな値となることが知られているが、このような先行研究で得られた知見をこの結果は反映していると考えられる。つまり、膜厚が厚い領域における epi-Ta の比抵抗はバルクの Ta の比抵抗によく一致しているため、この領域は純粋に  $\alpha$ -Ta の領域を評価していると言える。膜厚が薄い領域に関して得られたデータはこれまで報告されているような結果と異なっており、本研究の最も新規性のある部分である。この領域の SHA の増大に関しては、次節で詳しく議論することとする。amo-Ta のデバイスで得られた SHA の値は、従来の先行研究のものと比較して小さいものとなっているが、先行研究[8]で得られている値に対しては同等のものとなっている。今回の研究は面内磁化の強磁性体を用いて測定を行ったが、多くの先行研究は面直磁化の強磁性体を用いて測定を行っていることと、電流誘起有効磁場の大きさは磁化方向に対して強い依存性を示すことが報告されているので、以上の点が先行研究と異なる結果が得られた理由であると考えられる。DL field が epi-Ta のデバイスで 2 倍程度強化された一方で、FL field に関してはどちらのタイプのサンプルも膜厚が増加するほど絶対値が小さくなるような挙動を示している。このような挙動を示す理由は、CoFeB/AlOx 界面のスピン流のバックフローによるものと考えられる。

Epi-Ta と amo-Ta のサンプルの FL field の絶対値は大きな違いが無い事も見て取れる。FL field の強さは界面での Rashba SOI の強さに強く依存すると考えられるので、これらの大きさがそれほど大きく変わらないという事は、界面での SOI の強さは epi-Ta と amo-Ta のデバイスで違いがほとんどないことを示唆している。この結論は以下のような理由によるものと解釈できる。界面の SOI の大きさが単純な異種界面のフェルミ面の接続で決まっていると考えた時に、界面のコンタクトで生じる電場の強度は異種材料間のフェルミエネルギーの差に比例する。フェルミエネルギーは結晶構造に対して大きく依存しないことを考慮すると、epi-Ta/CoFeB 界面と amo-Ta/CoFeB 界面ではフェルミエネルギーの差に大きな違いが無いと考えられるので、FL field は大きな違いを示さなかったものと考えられる。スピンミキシングコンダクタンスの違いによって DL field および FL field の違いが生じているのではないかという着想もある。しかし、スピンミキシングコンダクタンスの大きさは、単純なモデルでは界面でのフェルミ波数の差分に比例することが明らかとなっている。フェルミ波数はフェルミエネルギーに比例するので、スピンミキシングコンダクタンスに関しても一般的には epi-Ta/CoFeB 界面と amo-Ta/CoFeB 界面では大きな違いは無いと考えて良い。しかし、この点に関しては過去に十分な実験が為されておらず、理論的に扱うのも難しい領域であることから、今後更なる研究が必要な点である。

## 5.12 一連の測定を包括した考察

ここまで示してきたように、SMR および harmonic Hall 測定の結果を解析、考察してきた。ここで得られたパラメータの一覧を改めて表 5.5 にまとめる。

表 5.5：本研究で得られた物性値の一覧

Sample	Measurement	$\rho_{\text{Ta}}$ ( $\mu\Omega\cdot\text{cm}$ )	SHC ( $\Omega\cdot\text{cm}$ ) <sup>-1</sup>	$\lambda_{\text{Ta}}$ (nm)	$ \theta_{\text{SH}}^{\text{SMR}} $ , $\theta_{\text{SH}}^{\text{HRM}}$
Epi-Ta	SMR	169.0	887.6	0.79	0.15
	Harmonic Hall		650.9	0.79	-0.11
Amo-Ta	SMR	190.4	472.7	0.99	0.09
	Harmonic Hall		210.1	0.33	-0.04

ここで、Ta 層の比抵抗 ( $\rho_{\text{Ta}}$ ), スピンホール伝導率, スピン緩和長 ( $\lambda_{\text{Ta}}$ ), SMR 測定によって得られた SHA ( $|\theta_{\text{SH}}^{\text{SMR}}|$ ), ハーモニックホール測定によって得られた SHA ( $\theta_{\text{SH}}^{\text{HRM}}$ )として表している。Epi-Ta のサンプルの比抵抗は膜厚が 4 nm 以下の領域に関しての値を示した。

本研究を行った結果得られた端的な結論は以下の 2 点である。①epi-Ta のデバイスは amo-Ta のデバイスよりも大きな SHA を示した。②FL field は epi-Ta も amo-Ta も大きな違いが見られなかった。しかし、これまでも述べたように、この実験結果は従来先行研究

で蓄積されてきた知見に対して直感的に理解できるものではなく、十分な考察が必要である。そこで本節ではなぜ epi-Ta のデバイスにおいて大きな SHA が得られたのかに焦点を当てて考察することとする。初めに、SHE の強化機構が界面に由来するものなのかバルクに由来するものなのかを考察する必要がある。近年の理論研究[9,10]によると、非磁性体/強磁性体界面に 3 次元的なモデルを適用することで、Rashba 効果由来の DL field が生じる可能性も存在するため、FL field が同様の値を示しているからと言って必ずしも Rashba 効果が支配的ではないと結論付けることはできない。しかし、本研究では epi-Ta, amo-Ta のデバイスで結晶構造は異なるものの材料の組み合わせが同じであるという点が重要である。Amin らの理論によれば、界面の Rashba 効果由来の DL field, FL field は界面での SOC の強さに対してどちらも比例する。よって FL field の大きさが epi-Ta と amo-Ta のデバイスで違いが大きくないのであれば、界面の Rashba 効果由来の DL field も、存在するにしても同等の強さのものとなるべきである。そのため、今回の実験結果をこの界面の Rashba 効果由来の DL field から議論するのは困難である。Ta/CoFeB 系はジャロシンスキー・守谷相互作用 (Dzyaloshinskii-Moriya Interaction : DMI) が強い系なので、DMI によって磁壁の移動がアシストされて磁化反転がしやすくなっているという可能性も考えられるが、一般的には DMI によって安定化されたカイラル磁壁を SOT によって移動させることができるのは磁壁のタイプが Neel 磁壁の時だけである。本研究で用いた素子のチャネル幅は 10  $\mu\text{m}$  なので、磁壁のタイプは Bloch 磁壁であることが予想されるため、DMI の効果は現在までに明らかになっている効果を考慮する限り、大きな役割を果たしてはいないと考えられる。以上のような考察を踏まえると、本実験で epi-Ta の SHA が amo-Ta と比べて大きな値が得られたことは、界面の効果ではなく、epi-Ta のバルク由来の効果であると考えられる。バルク由来の SHE の起源を明らかにするため、先行研究で得られたデータに対して今回の実験で得られたデータをプロットし、考察することを試みた。図 5.21 に本実験で得られたデータと Sagasta らによる Ta の SHA の比抵抗に対する依存性[11]を示した。このプロットにより、今回の Ta の SHE がなぜ強化されたのかを議論することができる。第 1 章で議論したように、内因性機構の SHE と side-jump 由来の SHE が支配的な系では、SHA は比抵抗に依存するためである。

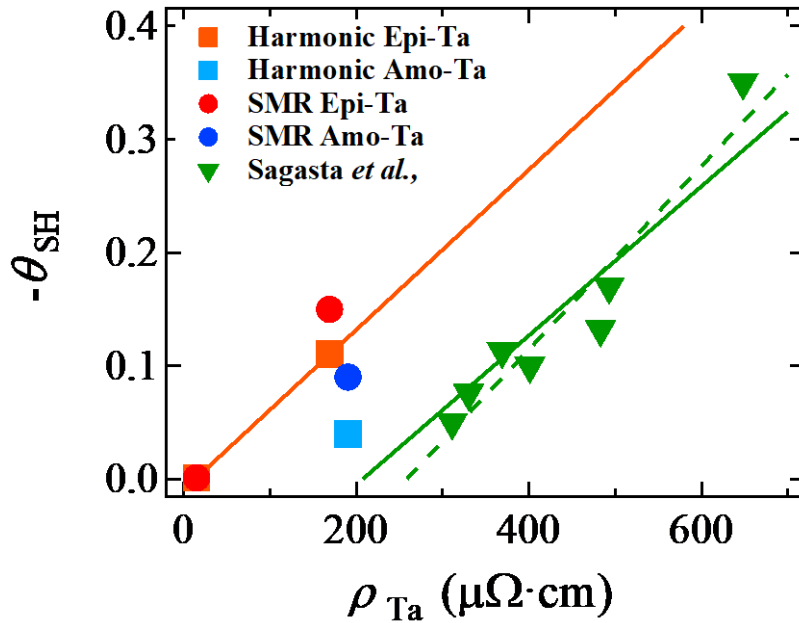


図 5.21: 本研究で得られた Ta の SHA の大きさを Ta の比抵抗に対してプロットしたものの。緑色のプロットは Sagasta らによって報告された Ta の比抵抗に対する SHA の依存性。オレンジの実線は本実験で得られた epi-Ta の harmonic Hall 測定データ、緑の実線は Sagasta らのデータに amo-Ta の harmonic Hall 測定データを含めたプロットに対する線形フィッティングである。緑の点線は Sagasta らのデータのみに対して線形フィッティングを行ったものである。

一方で、外因性機構のうちスキュー散乱による SHE に関しては、SHA の大きさは比抵抗に依存しない。このことを定式化すると、以上のことを踏まえて再度図 5.21 を見ると、epi-Ta の SHE の特徴が見えてくる。まず、SHE のうち比抵抗に依存する成分は図 5.21 の線形フィットの傾きに対応する。しかし、図 5.21 によると、epi-Ta、amo-Ta それぞれに対する線形フィットの傾きはそれほど大きな違いが無い事がわかる。それに対して、SHE のうち比抵抗に依存しない成分は図 5.21 の線形フィットの縦軸切片に対応する。amo-Ta の縦軸切片は縦軸の負領域になっていることがわかる(縦軸は $-\theta_{SH}$ なので切片の値そのものは正である)。一方で、epi-Ta の場合の切片はほぼゼロである。この結果が本実験における epi-Ta の SHE の強化機構を端的に表している。Ta の場合、内因性機構+side-jump 散乱の効果を起源とする SHE と、スキュー散乱を起源とする SHE とでは符号が異なることが明らかとなっている。また、通常の epitaxial ではない Ta の比抵抗領域では内因性機構+side-jump 散乱による寄与が支配的であるという事もわかっている。これらの知見を組み合わせると、本研究において epi-Ta の SHA が増大した理由は、内因性機構+side-jump 散乱に由来する

SHE を打ち消すように働く、スキュー散乱に由来する SHE が epi-Ta 中では amo-Ta に比べて抑制されているため、実効的な SHA が大きくなったためであると考えられる。このことは、図 5.22 に示すように、epi-Ta の第二次高調波成分の符号反転が見られないことから明らかである。

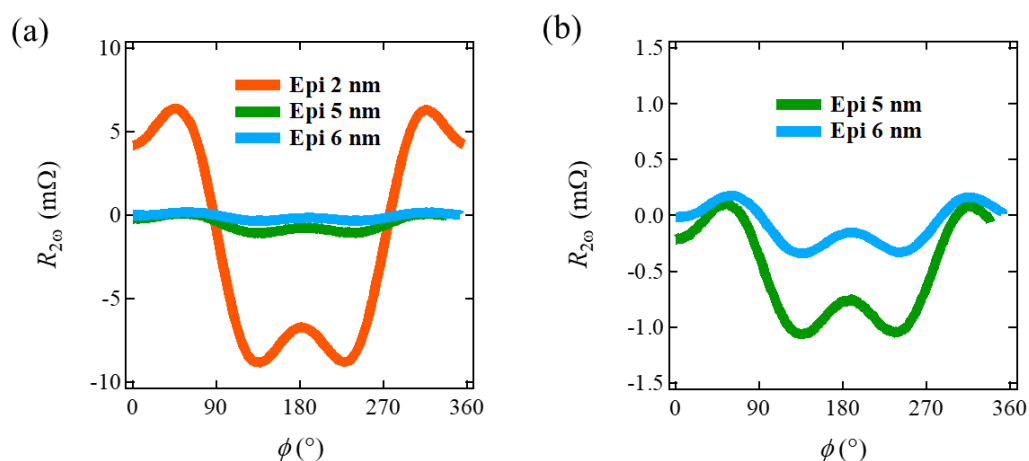


図 5.22: (a)異なる膜厚の epi-Ta デバイスの第二高調波シグナル。面内磁場強度はいずれの図も 100 mT である。各線と Ta 層の膜厚の対応関係は図中に示すとおりである。  
(b)Epi-Ta 5 nm および 6 nm のデバイスの第二高調波シグナルのデータを拡大したもの。

以上のような考察を展開したが、博士論文提出の直前に、我々の研究室で行った新たな研究結果を得ることができた。その研究結果によると、強磁性磁気共鳴の手法による測定を行った結果、epi-Ta/CoFeB と amo-Ta/CoFeB のデバイスでは、Ta/CoFeB 界面のスピンミキシングコンダクタンスが異なっている可能性が示された[12]。ここに詳細なデータを記述することはできないが、より詳細な epi-Ta/CoFeB 構造におけるスピンホール効果の強化機構の解明が待ち望まれる。

## 第5章 小括

本章では、SMR およびハーモニックホール測定の手法に着目し、面内磁化の Ta/CoFeB 構造を用いて epi-Ta の SHA を評価することに成功した。先行研究では epi-Ta の SHA は無視できるほど小さいと考えられていたが、今回の測定はそれとは対照的に、一般に用いられる amo-Ta/CoFeB 構造で得られた SHA の 1.5～2 倍の大きさの SHA が epi-Ta/CoFeB 構造で得られた。この結果が得られた理由を考察するために、得られた SHA を比抵抗に対してプロットした。その結果、epi-Ta の SHA は先行研究で評価された amo-Ta の結果によってスケールされないことが明らかとなった。これは、内因性の SHE と逆符号で寄与するスキュー散乱角の減少が理由として考えられる。更に、最新の研究結果によると、界面のスピンミキシングコンダクタンスが異なっている可能性が示唆された。epi-Ta/CoFeB 構造における主要な SHA の強化機構は現段階では断定できないが、今後の更なる研究が期待される。

## 第 5 章 参考文献

- [1] S. Y. Jang, S. H. Lim, and S. R. Lee, J. Appl. Phys. **107**, 09C707 (2010).
- [2] J. Kim, P. Sheng, S. Takahashi, S. Mitani, and M. Hayashi, Phys. Rev. Lett. **116**, 097201 (2016).
- [3] S. Vélez, V. N. Golovach, A. Bedoya-Pinto, M. Isasa, E. Sagasta, M. Abadia, C. Rogero, L. E. Hueso, F. S. Bergeret, and F. Casanova, Phys. Rev. Lett. **116**, 016603 (2016).
- [4] T. R. Werner, I. Banerjee, Q. S. Yang, C. M. Falco, and I. K. Schuller, Phys. Rev. B. **26**, 4 (1982).
- [5] N. N. Kovaleva, D. Chvostova, A. V. Bagdinov, M. G. Petrova, E. I. Demikhov, F. A. Pudonin, and A. Dejneka, Appl. Phys. Lett. **106**, 051907 (2015).
- [6] Y. Yang *et al.*, Nat. Commun. **9**, 2255 (2018).
- [7] C. O. Avci *et al.*, Nat. Phys. **11**, 570–575 (2015).
- [8] C. Zhang, M. Yamanouchi, H. Sato, S. Fukami, S. Ikeda, F. Matsukura, and H. Ohno, Appl. Phys. Lett. **103**, 262407 (2013).
- [9] V. P. Amin and M. D. Stiles, Phys. Rev. B **94**, 104419 (2016).
- [10] V. P. Amin and M. D. Stiles, Phys. Rev. B **94**, 104420 (2016).
- [11] E. Sagasta *et al.*, Phys. Rev. B **98**, 060410(R) (2018).
- [12] Haruki Ishii 学位論文に掲載予定

## 第 6 章 Ta 層を傾斜膜とした

### Ta/CoFeB/MgO 構造における外部磁場フリー磁化反転

本章では、より実用的なデバイス応用を考えた際に重要な技術である、外部磁場フリーの磁化反転を、応用上重要な系である Ta/CoFeB/MgO 構造で実現する新たな手法に関して述べる。これまで外部磁場フリーの磁化反転は様々な手法で実現されてきたが、今回明らかになった新たな手法は、これまでの手法よりも簡便な系で外部磁場フリーの磁化反転が実現可能である点が先行研究で明らかになっている手法に対する大きな優位性である。

#### 6.1 研究背景・外部磁場フリー電流誘起磁化反転に関する先行研究

外部磁場フリー電流誘起磁化反転の技術は、従来の磁化反転機構で問題となっていた、アシスト外部磁場を印加しなくては電流による磁化反転ができないという点を解決する重要な技術である。この技術は、主には強磁性体/反強磁性体ヘテロ構造における交換バイアスを用いた手法によるものが主な研究対象となってきた[1-5]。その後、CoFeB/Ti/CoFeB 三層構造における spin-orbit precession[6,7]に由来する面直方向にスピン偏極したスピンの流による外部磁場フリー磁化反転が実現された[8]。近年は、起源が明らかになっていないものも多いながら、更に多様な外部磁場フリーの磁化反転の機構が提案されている[9,10]。そのような外部磁場フリー磁化反転機構の中でも、Ta/CoFeB/Oxide 構造において、CoFeB 層および Oxide 層に傾斜を持たせる(以後、ウェッジ構造と称することとする)ことによって面内方向の構造反転対称性を破ることで外部磁場フリーの磁化反転が可能であることが示されている[11,12]。実験結果から、この構造における外部磁場フリーの磁化反転は、面内方向の構造反転対称性の破れに起因する面直方向の電流誘起有効磁場に起因するものであると考えられているが、その有効磁場の起源は全く明らかとなっていない。例えば、他のグループの先行研究では、同様の系においてアニール処理を施すことによって外部磁場フリーの磁化反転が可能であることが示されており、面内の構造反転対称性の破れというよりもむしろ Ta 層に対するボロンの拡散による、面直方向の連続的な構造反転対称性の破れが重要であることを示唆するような結果も報告されている[13]。Ta/CoFeB 界面の結合状態が重要であるという指摘もなされているが[12,14]、この系における電流誘起有効磁場の起源を探究する上では実験結果が不足しているというのが現状である。本章では、Ta 層にウェッジ構造を導入することによって構造反転対称性を崩した Ta/CoFeB/MgO 構造における外部磁場フリー磁化反転を実現し、これまで報告されていない新たな外部磁場フリーの磁化反転手法を提示するとともに、epi-Ta を下地層に用いた際の特性の違いに関しても考察することとする。



## 6.2 デバイス構造

本章で述べる実験で用いたデバイスは基本的に第3章で述べたものと同様の構造である。しかし、相違点としては、面直磁化膜を得るために上部の酸化膜を MgO としたことと、薄膜成長後に真空中で 300°C、1 時間のアニール処理を施した点である。試料の積層構造を図 6.1 に示す。また、測定デバイスの光学顕微鏡写真と Ta 層の傾斜方向を図 6.2 に示す。

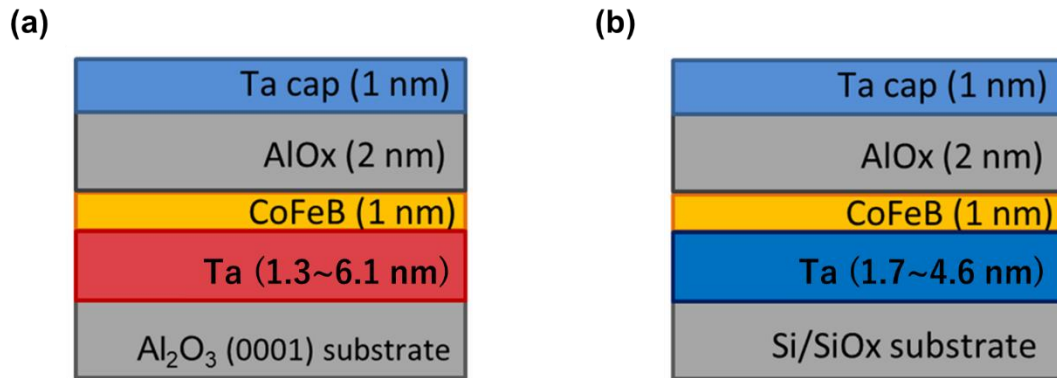


図 6.1: 外部磁場フリーの磁化反転の実験で使用した試料の積層構造。

(a)エピタキシャル Ta 下地層のデバイス。(b)アモルファス Ta 下地層のデバイス。

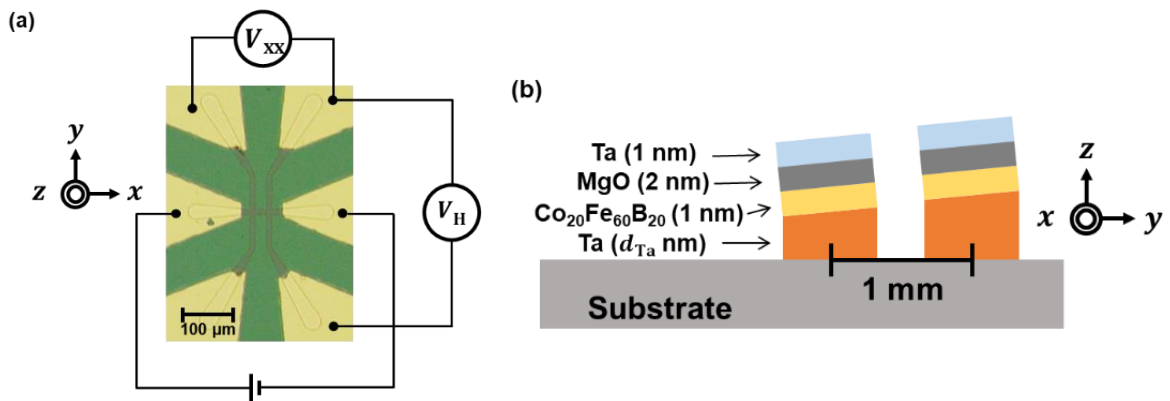


図 6.2: (a)外部磁場フリーの磁化反転の実験で使用した試料の光学顕微鏡写真および測定時の回路図。ホールバーのサイズは幅 10 $\mu\text{m}$ 、長さ 25 $\mu\text{m}$  である。(b)測定に用いたデバイスの傾斜方向とデバイスの間隔を表す図。

今回の実験では Ta 層の成膜時に傾斜シャッターを用いた成膜を行うことで 1 デバイス内の膜厚に傾斜を設けた。傾斜シャッターの移動速度は 0.4 mm/s とした。基板は 1cm 四方のものを使用し、1つの基板内の最大の膜厚差は 4 nm 程度であるため、1 デバイスにおける膜厚の違いは 0.004 nm 程度となっている。飽和磁化の値は VSM を用いて評価した。また、異常ホール測定によって各デバイスの保磁力を評価した。それらの結果を図 6.3 に示す。

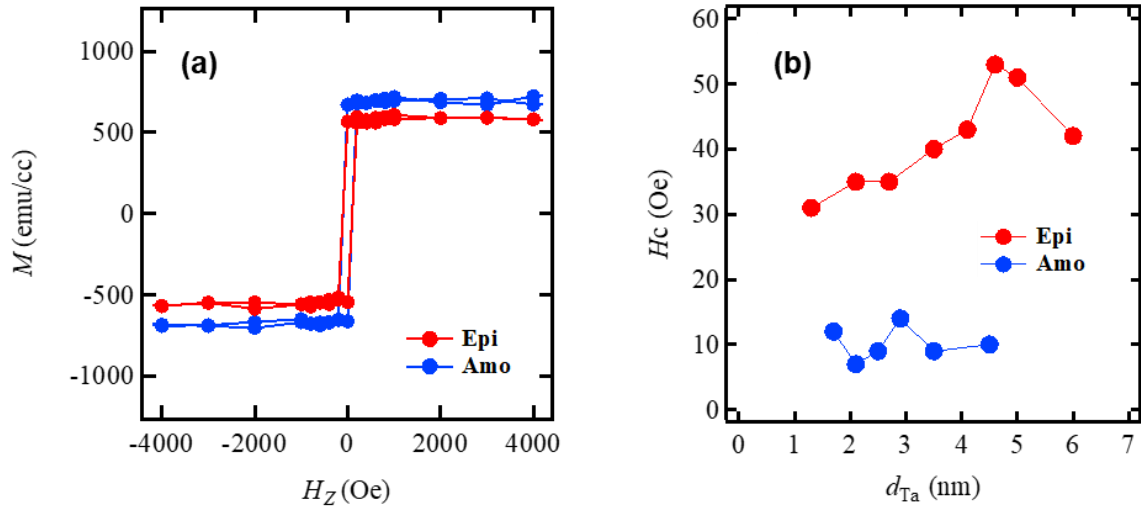


図 6.3: (a)VSM によって評価した CoFeB 層の磁化の大きさ。外部磁場の掃引方向は試料面直方向であり、面直方向が磁化容易軸となっていることが明らかである。(b)面直の外部磁場に対する異常ホール測定によって求めた CoFeB 層の保磁力の Ta 層の膜厚に対する変化。

得られた飽和磁化の大きさは epi-Ta, amo-Ta それぞれ 662 (emu/cc) および 776 (emu/cc)であった。保磁力の大きさは epi-Ta のものの方が amo-Ta のものよりも 3 倍以上大きくなっていることが明らかとなった。また、作製した素子の比抵抗を、第 3 章に示したものと同様の方法で評価した。その際のシート伝導度の大きさの Ta 層の膜厚依存性を以下の図 6.4 に示す。この解析によって得られた比抵抗の大きさは  $\rho_{Ta}^{epi} = 152.08$  ( $\mu\Omega \cdot cm$ ) ( $d_{Ta} < 4$  nm),  $\rho_{Ta}^{epi} = 29.14$  ( $\mu\Omega \cdot cm$ ) ( $d_{Ta} \geq 4$  nm),  $\rho_{Ta}^{amo} = 187.3$  ( $\mu\Omega \cdot cm$ ) であった。得られた比抵抗の大きさは第 3 章で得られた値と大きな違いは無く、第 3 章に示したものとほぼ同様の品質のデバイスが作製できていることがわかる。これらのデバイスを用いて以後に示す測定を進めた。

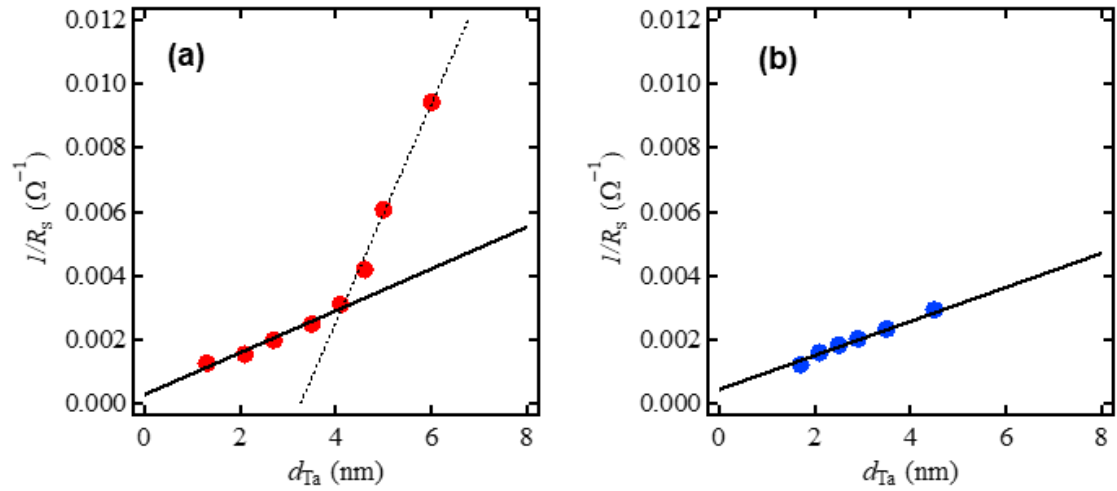


図 6.4: (a) Epi-Ta/CoFeB 構造におけるシート伝導度の Ta 層の膜厚依存性。実線は Ta 層の厚さが 4 nm 以下の領域、破線は Ta 層の厚さが 4 nm より厚い領域に対する線形フィッティングの結果である。(b) Amo-Ta/CoFeB 構造におけるシート伝導度の Ta 層の膜厚依存性。

### 6.3 外部磁場フリーの磁化反転

作製したデバイスがどのような磁化反転特性を示すのかを知るために、外部磁場を一切印加していない状態でパルス電流を印加しながら異常ホール効果の測定を行った。パルス電流のパルス幅は 10 ms とし、0.5 mA の読出し電流を印加することで異常ホール電圧を検出した。測定結果を図 6.5 に示す。結果として、epi-Ta, amo-Ta どちらのデバイスでも電流誘起磁化反転を観測することができた。この電流誘起磁化反転の起源がどこにあるのか、またその反転効率に関しては後に議論することとする。得られた磁化反転の閾値電流値  $I_c$  を、以下の式(6.1)を用いて閾値電流密度  $j_c$  に変換した。

$$j_c = R_{xx} I_c / l \rho_{Ta}, \quad (6.1)$$

ここで、 $R_{xx}$  は用いた素子の 4 端子抵抗値、 $l$  は素子の長さで、今回のデバイスでは 25  $\mu\text{m}$  である。得られた  $j_c$  を Ta 層の膜厚に対してプロットしたものを図 6.6 に示した。この結果から、磁化反転の閾値電流密度は epi-Ta のデバイスで得られたもののほうが amo-Ta のデバイスのものよりも 3 倍以上大きくなることが明らかとなった。

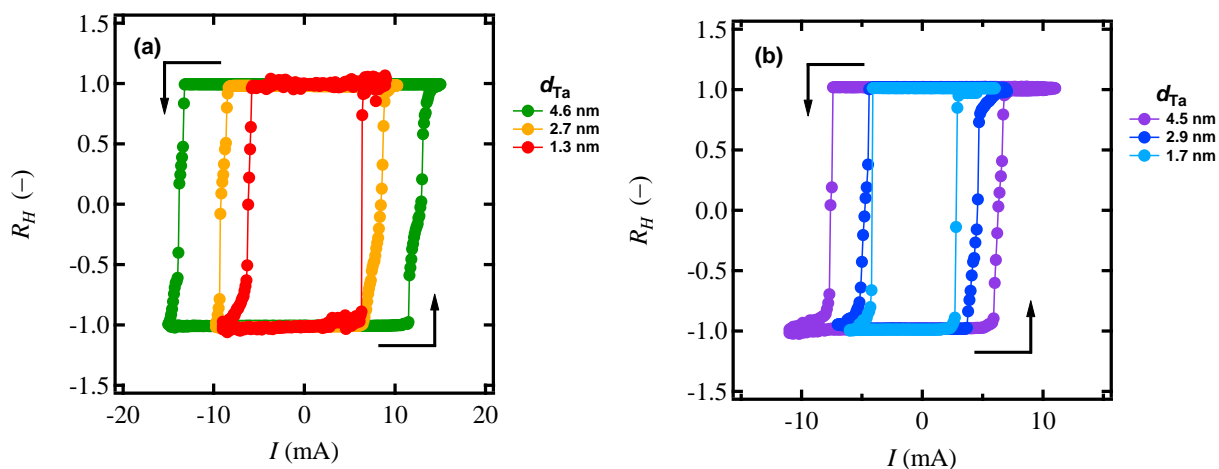


図 6.5: (a)epi-Ta と(b)amo-Ta のデバイスの電流誘起磁化反転の測定結果。このデータを取得する際に、外部磁場は一切印加していない。各グラフのプロットの色の違いはTa層の膜厚の違いを表しており、膜厚との対応は図中に記載されている通りである。図中の黒矢印は磁化の反転方向を表す。

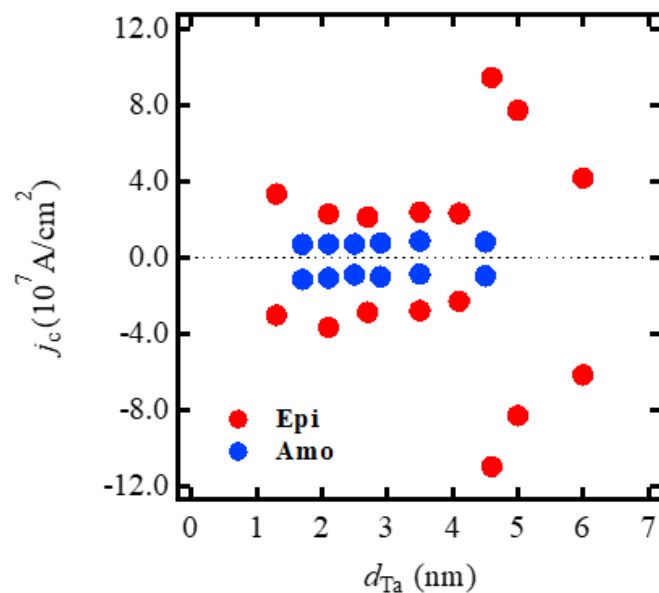


図 6.6: 実験的に得られた磁化反転の閾値電流密度の Ta 層の膜厚依存性。赤丸、青丸それぞれのプロットは epi-Ta, amo-Ta のデバイスで得られた結果を示す。

## 6.4 電流誘起有効磁場によるヒステリシスループシフト

前節でみられた電流誘起磁化反転による実験のみでは、測定系に由来する磁場や地磁場などの予期しない磁場の影響で実効的なアシスト磁場が加わり、それによって磁化反転が生じているという可能性を否定できない。そこで、 $z$  方向にスピン偏極したスピン流による電流誘起磁化反転が生じているということを証明するより確かな根拠を得るために、ヒステリシスループのシフトを観測する実験を行った。この実験では、異常ホール抵抗を面直の外部磁場を掃引しながら測定し、その測定電流を磁場の 1 スイープが終了するごとに変化させて繰り返し測定を行った。その実験結果を以下の図 6.7 に示す。この図からわかるように、epi-Ta, amo-Ta どちらのデバイスでもパルス電流の振幅の大きさおよびその極性に応じて、ヒステリシスループのシフトが観測された。このヒステリシスループのシフト量から、電流誘起有効磁場の大きさを見積もることができる。電流誘起有効磁場の定量的な議論は次節で行うこととし、ここでは片方の保磁力だけに対してシフトが見られる理由に関して言及する。これは磁化反転電流をパルスで印加しているためであり、以下の図 6.8 を見るとその意味するところが明らかであると思う。例として、図 6.7 の青色のプロットで示されているような、印加電流の極性が負であるような場合を考える。この時、図 8.7 に見て取れるように、磁化方向が  $M^+$  から  $M^-$  へと反転する際の保磁力は電流誘起有効磁場によって変調されるのに対し、その逆の場合には保持力が変調されていない。このような状況の系を例にとり、図 6.8 に示した、外部磁場と電流誘起有効磁場の総和である  $B^{total}$  の時間変化を基に、定常電流印加の場合とパルス電流印加の場合の磁化反転を生じる有効磁場強度の変調のされ方の違いを考えたい。定常電流印加の場合も  $B^{total}$  が時間に対して不連続に変化しているのは、外部磁場を掃引する場合にも実際には連続的に磁場を掃引しているわけではなく、定磁場が印加され、有限時間が経過した後にそれよりも少し値の小さい(または大きい)磁場が印加されるという動作を繰り返しているはずなので、それを反映して時間に対して不連続な量として表現した。簡単のために、図 6.8 中に点線で示した印加電流値が小さい場合の保磁力と  $B^{total}$  が等しくなった時に磁化反転が生じると考えよう(実際にはジュール熱の効果があり、定量的に必ずしも正しくない)。図 6.8(a)では、保持力と  $B^{total}$  が等しくなる条件は、必ずパルス電流による電流誘起有効磁場の成分によって満たされる。一方で、それとは逆に図 6.8(b)では、保持力と  $B^{total}$  が等しくなる条件は、必ず外部磁場の成分によって満たされることがわかる。このように、電流の印加方法の違いによってヒステリシスループのシフトが起こる対称性が異なってくることがわかる。G. Yu らが示した結果[11,12]は、どちらも定常電流を印加しているため、保持力は磁化反転の方向によらずに電流誘起有効磁場による変調を受ける。よって、ヒステリシスループシフトの対称性の違いは、物理的に本質的なものというよりも、むしろ電流印加の手法が異なっているために生じる現象であることを示した。よって、このデータを用いて定量的な議論を行うことは妥当であると考ええる。

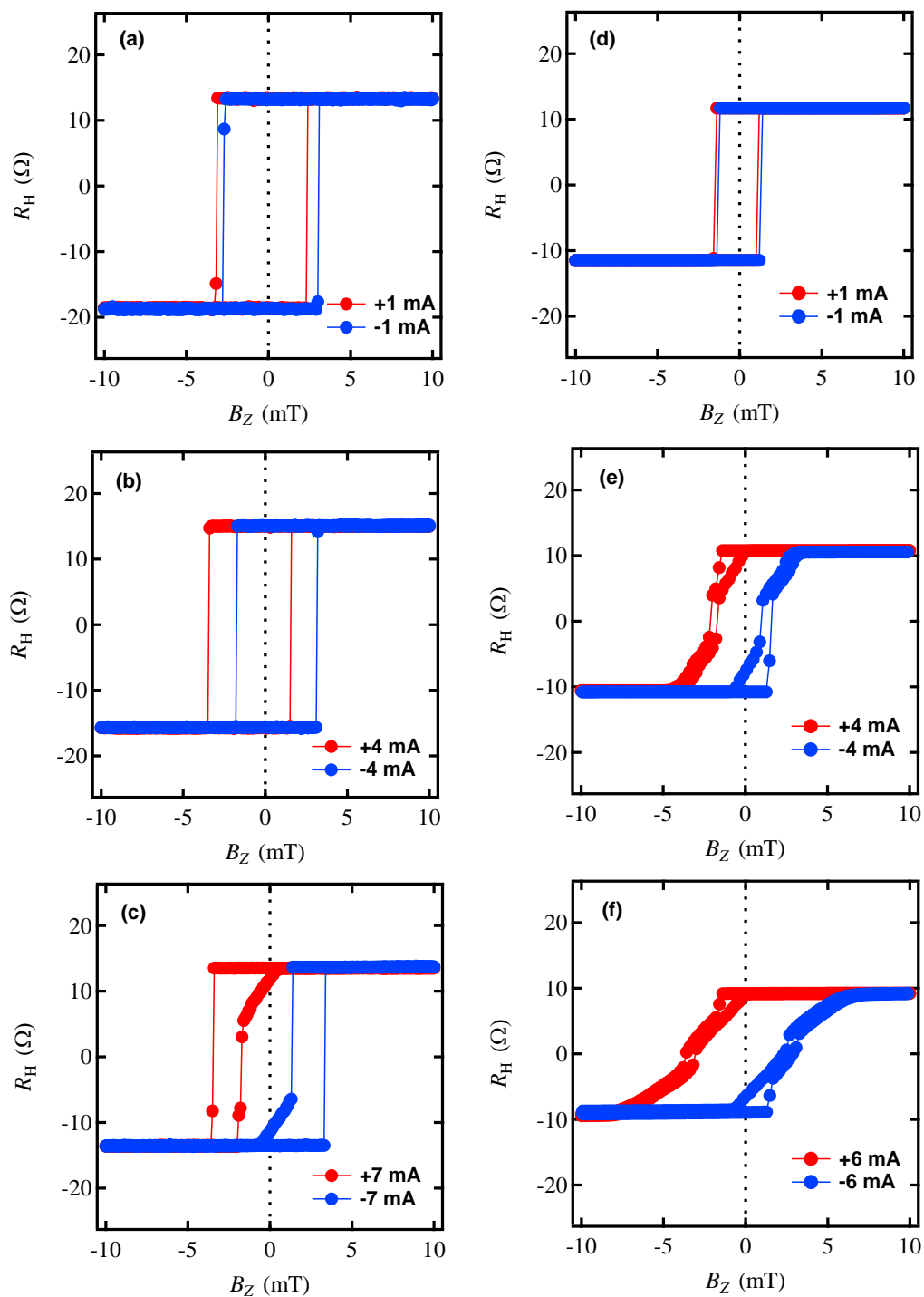


図 6.7: (a)-(c)epi-Ta および(d)-(f)amo-Ta のデバイスで観測された印加電流値および極性に依存したヒステリシスループのシフト。印加電流値および印加電流の極性は図中に記載した通りである。

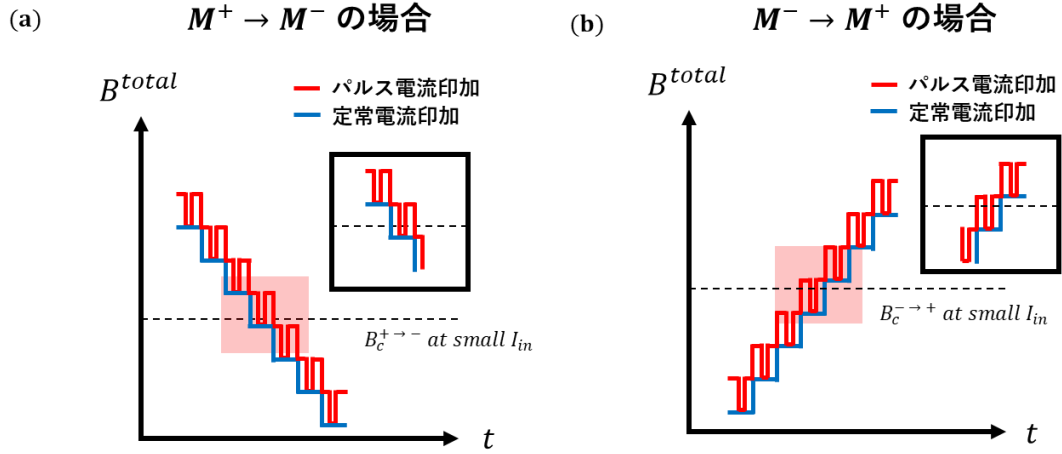


図 6.8: パルス電流印加時と定常電流印加時の、磁化反転の保磁力の変調が生じるか否かを議論するため、本文中で定義した $B^{total}$ の時間依存性を模式的に示した。本系における負の電流を印加した場合を想定している。図を読み解く際には図 8.7 中の青色のプロットを同時に参照されたい。(a)磁化が $M^+$ から $M^-$ へ反転する場合および(b)  $M^-$ から $M^+$ へ反転する場合をそれぞれ示した。

## 6.5 電流誘起有効磁場の定量評価

ここまでの段階で、Ta 層をウェッジ構造にした Ta/CoFeB/MgO 構造において、外部磁場フリーの電流誘起磁化反転が可能であることが実証され、その起源が z 方向への電流誘起有効磁場であることがヒステリシスループシフトの実験から示された。本節では、この実験結果を定量的に分析してゆく。定量的な議論は、ヒステリシスループシフトのデータを基に行う。ここで、ヒステリシスループのシフト量は電流誘起有効磁場 $B^{eff}$ に対応し、これを定量評価するために、特徴的な磁場として $B_{SW}^+$ と $B_{SW}^-$ を導入する。これらの定義はそれぞれ $M^-$ から $M^+$ へ、 $M^+$ から $M^-$ への磁化反転が生じる磁場強度である。この定義を視覚的に理解できるよう、以下の図 6.9 を示した。 $B^{eff}$ は式(6.2)に示すように $B_{SW}^+$ と $B_{SW}^-$ の可算平均として定義した。

$$B^{eff} = (B_{SW}^+ + B_{SW}^-)/2, \quad (6.2)$$

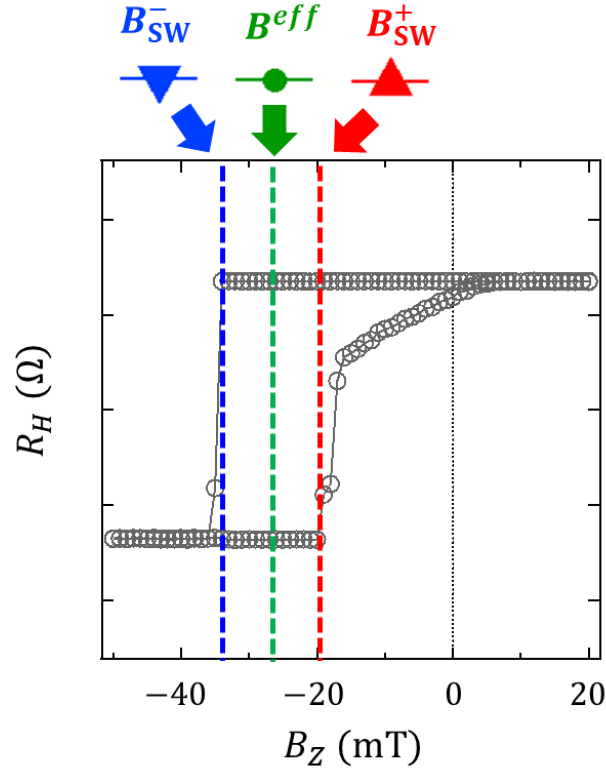


図 6.9:  $B_{SW}^+$ と $B_{SW}^-$ および $B^{eff}$ の定義。グレーでプロットされている実験データは図 8.7(c)の+7 mA のデータと同一のものである。

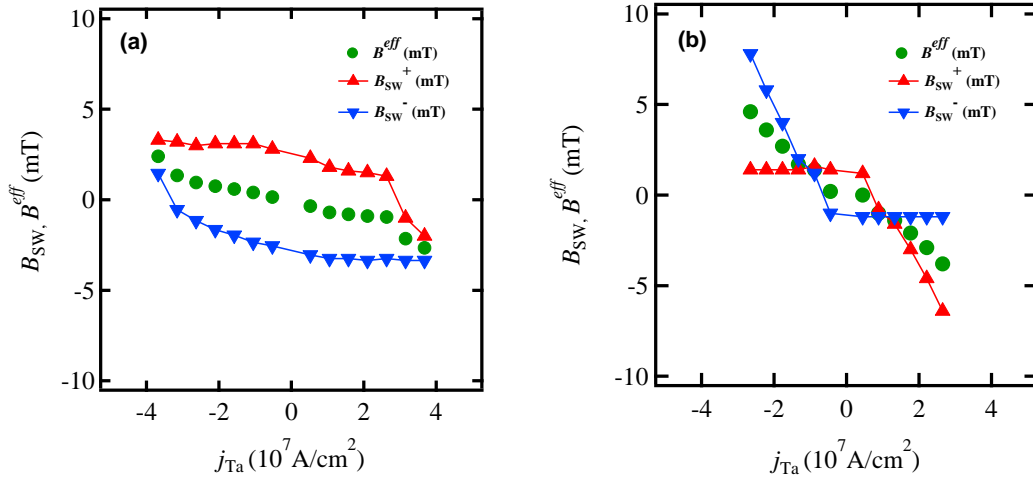


図 6.7: ヒステリシスループのシフトの実験により得られた、 $B_{SW}^+$ と $B_{SW}^-$ および $B^{eff}$ の印加電流密度 $j_{Ta}$ に対する変化。(a)epi-Taの膜厚 1.3 nm のデバイスおよび(b)amo-Taの膜厚 1.7 nm のデバイスより得られた結果をそれぞれ示した。プロットの色と特性磁場の対応関係は図中に示した通りである。



図 6.7 から明らかなように、式(6.2)によって得られた $B^{eff}$ は、印加電流密度に対して線形に変化するため、これを電流誘起有効磁場と考えるのが妥当であることが見て取れる。そこで、得られた $B^{eff}$ は以下の式(6.3)のような電流密度の1次で変化すると考え、その比例係数を $\beta$ とする。

$$B^{eff} = \beta j_{Ta}, \quad (6.3)$$

この $\beta$ は印加電流密度と $B^{eff}$ の変換効率を表す指標であり、 $\beta$ を比較することによってデバイス間の特性の違いを定量的に議論することが可能となる。ここで、式(6.2)による $B^{eff}$ の定義は先行研究[11,12]によるものと異なっており、先行研究のものはこれにマイナス符号を乗じたものになっている。これは外部磁場の符号の定義に由来するものであり、その定義は本研究とは逆符号となっている。そのため、先行研究の結果に対して本研究の生データの応答が逆符号になっているように見受けられるが、そうではないことを断っておく。結果的に、 $\beta$ を比較することによって符号も含めた定量的な比較ができることが重要である。

ここで、式(6.3)で定義した $\beta$ を求めるために、測定を行った各デバイスに対して得られた $j_{Ta}$ に対する $B^{eff}$ をプロットしたグラフに対する線形フィッティングによる解析を行った。典型的な結果を以下の図 6.9 に示す。

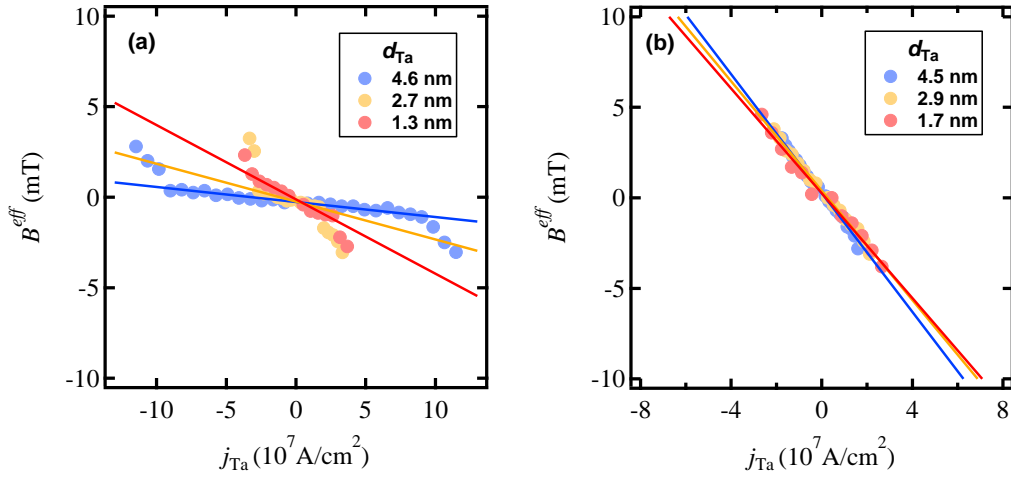


図 6.9:(a)epi-Ta および(b)amo-Ta のデバイスで得られた $B^{eff}$ の印加電流密度 $j_{Ta}$ に対する変化を異なる膜厚のデバイスに関して示したものの。Ta 層の膜厚とプロットの色に対応関係は図中に示した通りである。実線は実験データに対する線形フィッティングを表す。(a)に関して、図中に示してある線形フィッティングは低電流密度領域に制限したものである。

以上の解析によって得られた $\beta$ を Ta 層の膜厚に対してプロットしたものを以下の図 6.10 に示す。

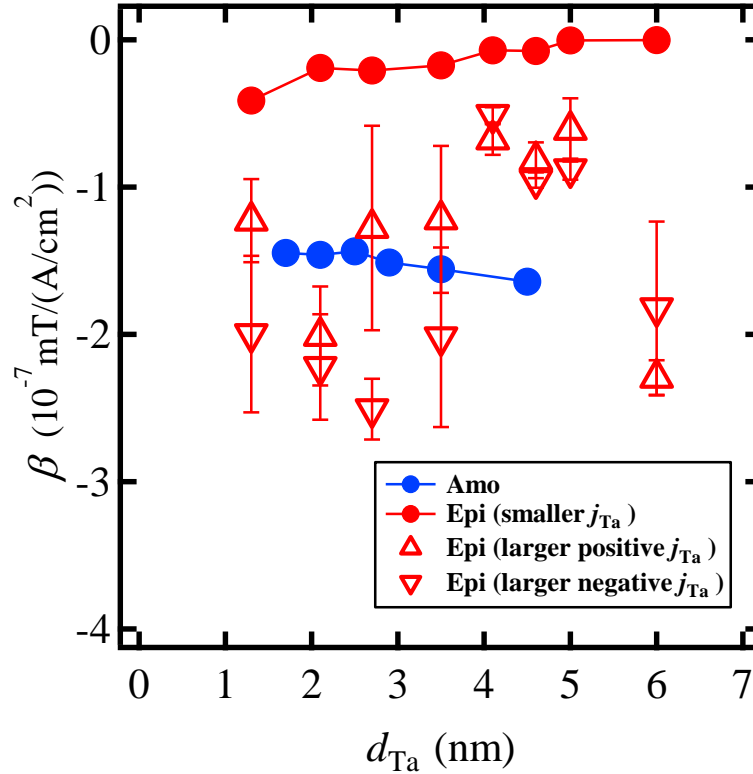


図 6.10:本実験によって得られた $\beta$ の Ta 層の膜厚依存性。青のプロットは amo-Ta のデバイスによって得られた値である。赤のプロットは epi-Ta のデバイスによって得られたものであり、赤の丸は低電流密度領域、順、逆三角はそれぞれ正、負の高電流密度領域を用いた線形フィッティングによって得られた値である。

Epi-Ta のデータは、図 6.9 に示すように全てのデバイスで異なる 3つの線形領域が得られたため、3つの領域に分けてフィッティングを行った。Amo-Ta のデバイスで得られた $\beta$ と、epi-Ta の低電流密度領域で得られた $\beta$ を比較すると、amo-Ta のもののほうが絶対値で考えれば 3 倍以上大きな値を示すことが明らかとなった。一方、epi-Ta の高電流密度領域で得られた $\beta$ を考えると、これは amo-Ta のものと同程度の大きさになっていることがわかる。エラーバーが大きくなっているのは、データプロットが少ないことに由来している。以上の実験から、電流誘起有効磁場の強度とその変換効率 $\beta$ の定量的な値を得た。また、epi-Ta のデバイスでは、従来の研究では観測されなかった複数の線形領域が存在することが明らかとなった。次節では電流誘起有効磁場の強度や、epi-Ta のデバイスで見られた電流誘起有効磁場の印加電流密度に対する特異な振る舞いに関する議論を行う。

## 6.6 考察・電流誘起有効磁場の起源

本節では得られた電流誘起有効磁場の強度が epi-Ta と amo-Ta で異なっていた理由と、epi-Ta で見られた  $B^{eff}$  の  $j_{Ta}$  に対する特異な振る舞いが見られた理由に関して考察する。初めに電流誘起有効磁場の起源に関して述べる。ここでは、観測された電流誘起有効磁場がウェッジ構造による面内方向の構造反転対称性の破れに起因するものと、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用(DMI)に由来するものの2つの異なる効果が同時に観測されているものとする。DMI は Néel 磁壁を安定化させることが知られており、Néel 磁壁が安定となっている場合には DL torque によって Néel 磁壁を電流駆動できる[15-17]。また、C-F. Pai らは Pt/Co 面直磁化構造を用いた実験を行い、そのような DMI が存在する系において、Co がウェッジ構造の場合と平坦膜の場合での電流誘起有効磁場の振る舞いの違いを示している[18]。その結果、ウェッジ膜の場合には DMI による有効磁場に加えて、構造反転対称性の破れに起因した有効磁場が存在していることを指摘している。本実験の系はこれと同様の系になっており、ウェッジ構造による寄与と DMI の寄与の双方を考慮しなくてはならない。これらの効果を正しく定量的に切り分けるためには、更なる実験が必要ではあるが、ウェッジ構造を作製する際のシャッターの移動速度が epi-Ta, amo-Ta どちらのデバイスでも同じであるため、構造反転対称性の破れによる寄与があまり変わらないと仮定すると、DMI の寄与の大きさの違いが主に違いを生じていることになる。DMI が強い場合には Néel 磁壁を安定化できるため、SOT による高効率な磁壁移動が期待できるが、DMI が弱い場合には Bloch 磁壁が安定となり、STT により磁壁が駆動されることとなる。STT による磁壁駆動の効率は SOT の場合よりも低いことが知られている[19]。そのため、epi-Ta のデバイスの方が、DMI が弱く Néel 磁壁が安定化されなかったために、有効磁場が小さくなったことが図 8.10 に示したように epi-Ta のデバイスで得られた  $\beta$  の絶対値が小さくなったということが推測できる。この考察をより確かなものにするためには、DMI の強さを定量評価し、epi-Ta と amo-Ta の場合とで比較を行う必要がある。

続いて、epi-Ta のデバイスで複数の線形領域が確認された理由を述べる。図 6.9(a)のプロットにおいて、高電流密度側の線形領域が始まる電流密度を新たに  $j_c'$  と定義する。この  $j_c'$  と図 6.6 に示した epi-Ta の  $j_c$  を同一のグラフに示したのが図 6.11 である。この図を見ると、 $j_c$  と  $j_c'$  は定量的に非常によく一致することが明らかである。また、この  $j_c$  や  $j_c'$  の振る舞いは図 6.3(b) に示した保磁力の膜厚依存性とも定性的に一致する。この結果が意味するところは、epi-Ta の  $j_c$  や  $j_c'$  は外因性の磁壁ピンングによって支配されているということである。このような外因性の磁壁ピンングの効果は Co/Ni 積層膜系の電流による磁壁移動の研究によって確認されている[20]。本研究の epi-Ta の系においては、外因性のドメインピンングの強度が高いために、 $j_c$  が大きくなっているものと考えられる。

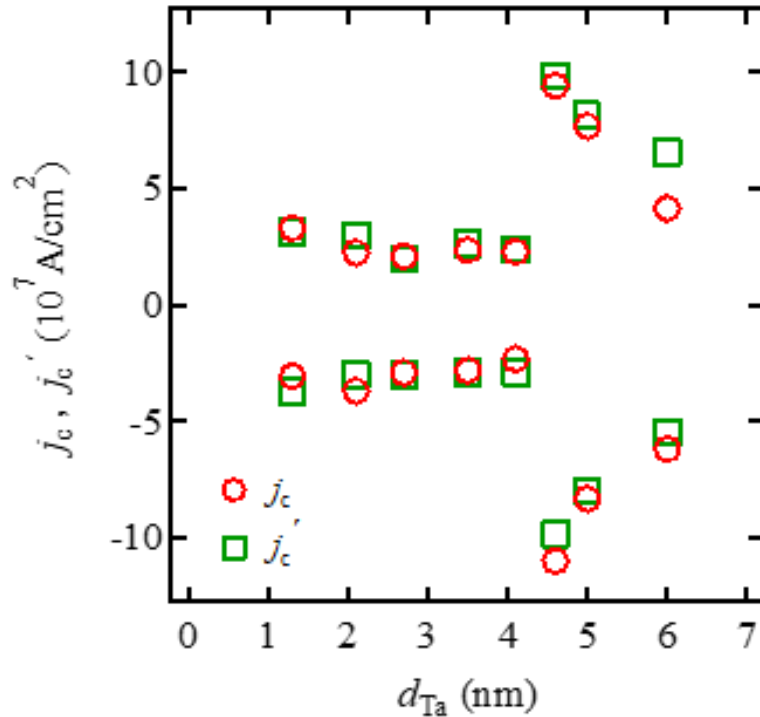


図 6.11: Epi-Ta のデバイスで得られた $j_c$ (赤)および $j'_c$ (緑)の Ta 層の膜厚依存性。

Epi-Ta の系で外因性の磁壁ピニングの効果が amo-Ta の系よりも顕著であった理由は、デバイス作製のプロセスに由来するものであると考えられる。Ta/CoFeB/MgO 系は、熱酸化シリコンなどのアモルファス基板に成長した際に、Ta および CoFeB 層はアモルファスで成長するのに対し、MgO 層は(001)配向の多結晶で成長することが知られている。このような系に適切なアニール処理を施すと、MgO 層の結晶構造に引きずられて CoFeB 層が(001)配向で結晶化する[21]。この手法は高効率なトンネル磁気抵抗比を得るために CoFeB/MgO 構造の磁気トンネル接合を作製する際に用いられる手法である。この事実を踏まえると、epi-Ta が下地層の場合には状況が変わってくることは容易に想像がつく。いま、Ta は(111)配向しているため、bcc 構造の(001)面とは格子整合が得られない。また、epi-Ta のデバイスの MgO は必ずしも(001)配向しているとは限らない。よって、この構造にアニール処理を施した際に、CoFeB の結晶構造は Ta 層にも MgO 層にも引きずられることになるため、結果的に複数の結晶方位を含んだ多結晶となり、その粒界が磁壁のピニングサイトとして作用するものと考えられる。この推論の妥当性を検証するために、図 6.12 に今回のデバイスの積層構造の TEM 像を示した。この TEM 像からも、図 6.12(b)では MgO が一軸配向しているのに対し、図 6.12(a)では MgO が多結晶になっていることがわかる。このことから、epi-Ta のデバイスでの外因性ピニングの影響は、アニール時に CoFeB 層内に導入された結晶粒界によるものであると考えられる。

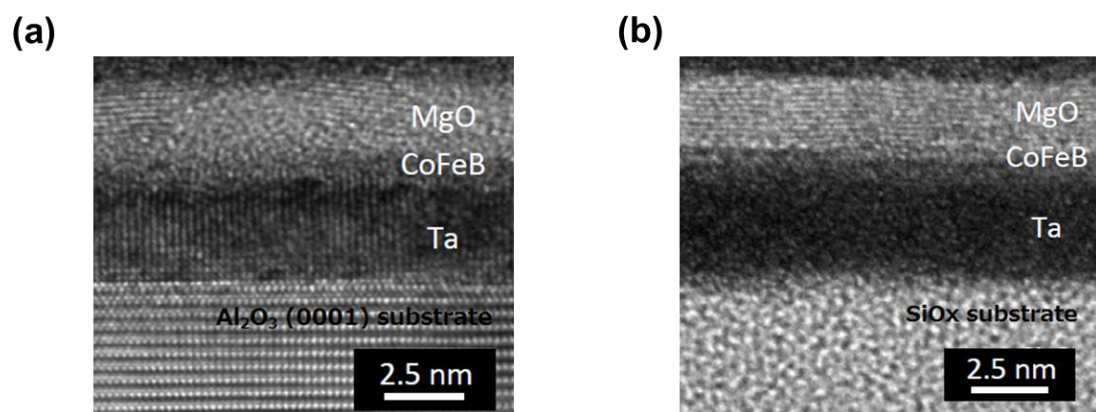


図 6.12: (a)epi-Ta および(b)amo-Ta/CoFeB/MgO 構造の断面 TEM 像。これは積層構造を真空中において、300°Cで 1 時間アニール処理後に撮影した画像である。

## 第6章 小括

本章では、先行研究とは異なり、Ta層をウェッジ構造とする Ta/CoFeB/MgO 面直磁化膜を用いて、外部磁場フリーの電流誘起磁化反転が可能であることを実証した。更に、これまでの章と同様に下地の Ta 層がエピタキシャルのデバイスとアモルファスのデバイスを作製し、どのような特性の違いがあるのかを比較した。結果的に、下地層の構造によらずに外部磁場フリーの磁化反転を達成することができることが明らかとなった。更に、これが電流誘起有効磁場によって生じているものであることを確認するために、異常ホール効果の測定によって得られるヒステリシスループのシフトが観測されるかどうかを検証した。その結果、面内方向の外部磁場を一切印加していない状況であっても印加電流の極性に対応したヒステリシスループのシフトを観測することができ、この系において外部磁場フリーの deterministic な磁化反転が可能であることが明らかとなった。電流誘起有効磁場の大きさは、アモルファスの下地層のサンプルの方がエピタキシャルな下地層のものより3倍以上大きくなることが明らかとなった。その理由は DMI の大きさが下地層の構造に依存して異なっているためであると考えられるが、この考察をより確かなものにするためには今後の更なる実験的な検証が必要である。更に、これまでの先行研究とは異なり、エピタキシャル下地層のデバイスの電流誘起有効磁場の電流密度に対する2つの線形領域が観測された。このことから、外因性の磁壁ピニングの効果が磁化反転の閾値電流密度に大きな影響を及ぼしていることが明らかとなった。

## 第 6 章 参考文献

- [1] Y-C. Lau, D. Betto, K. Rode, J. M. D. Coey, and P. Stamenov, *Nat. Nanotechnol.* **10**, 1038 (2016).
- [2] A. Brink, G. Vermijs, A. Solignac, J. Koo, J.T. Kohlhepp, H. J. M. Swagten, and B. Koopmans, *Nat. Commun.* **7**, 10854 (2016).
- [3] W. J. Kong, Y. R. Ji, X. Zhang, Q. T. Zhang, H. Yuan, C. H. Wan, X. F. Han, T. Yu, K. Fukuda, H. Naganuma, and M-J. Tung, *Appl. Phys. Lett.* **109**, 132402 (2016).
- [4] S. Fukami, C. Zhang, S. DuttaGupta, A. Kurenkov, and H. Ohno, *Nat. Mater.* **15**, 535-542 (2016).
- [5] J-Y. Chen, M. DC, D. Zhang, Z. Zhao, M. Li, and J-P. Wang, *Appl. Phys. Lett.* **111**, 012402 (2017).
- [6] V. P. Amin and M. D. Stiles, *Phys. Rev. B* **94**, 104419 (2016).
- [7] V. P. Amin and M. D. Stiles, *Phys. Rev. B* **94**, 104420 (2016).
- [8] S. C. Baek, V. P. Amin, Y. Oh, G. Go, S.-J. Lee, M. D. Stiles, B.-G. Park, and K.-J. Lee, *Nat. Mater.* **17**, 509 (2018).
- [9] Q. Ma, Y. Li, D. B. Gopman, Y. P. Kabanov, R. D. Shull, and C. L. Chien, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 117703 (2018).
- [10] T.C. Chuang, C.F. Pai, and S.Y. Huang, *Phys. Rev. Applied.* **11**, 061005 (2019).
- [11] G. Yu, P. Upadhyaya, Y. Fan, G. Alzate. W. Jiang, K. L. Wong, S. Takei, S. A. Bender, L-T. Chang, Y. Jiang, M. Lang, J. Tang, Y. Wang, Y. Tserkovnyak, P. K. Amiri, and K. L. Wang, *Nat. Nanotechnol.* **9**, 548-554 (2014).
- [12] G. Yu, L.-T. Chang, M. Akyol, P. Upadhyaya, C. He, X. Li, K. L. Wong, P. K. Amiri, and K. L. Wang, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 102411 (2014).

- [13] J. Cao, Y. Zheng, X. Su, L. Hao, Y. Wang, J. Bai, and F. Wei, *Appl. Phys. Lett.* **108**, 172404 (2016).
- [14] B. Cui, H. Wu, D. Li, S. A. Razavi, D. Wu, K. L. Wong, M. Chang, M. Gao, Y. Zuo, L. Xi, and K. L. Wang, *ACS Appl. Mater. Interfaces*. **11**, 39369–39375 (2019).
- [15] S. Emori, U. Bauer, A. M. Ahn, E. Martinez, and G. S. D. Beach, *Nat. Mater.* **12**, 611 (2013).
- [16] K. S. Ryu, L. Thomas, S. H. Yang, and S. Parkin, *Nat. Nanotechnol.* **8**, 527 (2013).
- [17] J. Torrejon, J. Kim, J. Sinha, S. Mitani, M. Hayashi, M. Yamanouchi, and H. Ohno, *Nat. Commun.* **5**, 4655 (2014).
- [18] C-F. Pai, M. Mann, A. J. Tan, and G. S. D. Beach, *Phys. Rev. B*. **93**, 144409 (2016).
- [19] S. Emori, E. Martinez, K-J. Lee, H-W. Lee, U. Bauer, S-M. Ahn, P. Agrawal, D. C. Bono and G. S. D. Beach, *Phys. Rev. B* **90**, 184427 (2014).
- [20] K-J. Kim, R. Hiramatsu, T. Moriyama, H. Tanigawa, T. Suzuki, E. Kariyada, and T. Ono, *Appl. Phys. Express*. **7**, 053003 (2014).
- [21] S. Yuasa and D. D. Djayaprawira, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **40** R337 (2007).



## 第7章 総括・結論

最後に、本研究を通して得られた知見をまとめて、論文を締めくくる。

第1章では、初めにスピントロニクス分野を理解する上で必要な基礎的な概念を導入して。続いて先行研究を概観し、これまでのスピントロニクス分野がどのように発展してきたのかを示した。それを踏まえて、比抵抗にスケールされない現象、その中でも特に界面の効果の重要性を示し、エピタキシャルな Ta 薄膜を作製し、その特性を評価することの意義を述べた。

第2章では、実験結果を理解する上で必要な物理現象に関して言及した。量子干渉効果に着目した測定、スピンホール磁気抵抗測定、ハーモニックホール測定の理論的な理解および解析式の導出方法に関して述べた。

第3章では、エピタキシャル Ta の結晶性や、デバイス作製方法などに関して言及した。本章で述べた内容によって、本実験で用いたエピタキシャル Ta は高品質であり、また平均自由行程も参照試料のアモルファス Ta と比べて長くなっていることが明らかとなったことから、界面の効果を検出するのに適した系を作ること成功したことを示した。

第4章では、極低温における量子干渉効果に着目した測定を行った。Ta 単層薄膜を用いた測定を行った結果、エピタキシャル Ta では従来金属中で観測される EY 機構のスピン緩和ではなく、DP 機構のスピン緩和が支配的であることが明らかとなった。このことから、界面の構造反転対称性の破れに起因した Rashba 効果の寄与がエピタキシャル Ta のスピン緩和に大きな影響を及ぼしていることが示された。

第5章では、舞台を室温に移し、Ta/CoFeB ヘテロ構造の系におけるスピンホール効果に着目した研究を行った。測定手法として、1 デバイスに対して相補的な実験を行うために、スピンホール磁気抵抗測定とハーモニックホール測定を採用した。結果として、エピタキシャル Ta のスピンホール角は、参照試料のアモルファス Ta のものと比較して 1.5~2 倍程度増大していることが明らかとなった。その起源は、当初はスキュー散乱によるスピンホール角の減少によるものであると考えていたが、我々のグループの最新の研究結果によると、Ta/CoFeB 界面のスピン透過率がエピタキシャル Ta とアモルファス Ta で異なっていることが実験的に明らかとなりつつある。これは新たな物理的知見を与える研究結果であり、今後の更なる研究が期待される。スピントロニクス分野では、従来  $\alpha$ -Ta のスピンホール角は小さいと信じられていた。しかし、今回の結果は従来考えられていた知見を覆す、重要な知見を与えるものとなっている。

最後に第6章では、界面由来の電流誘起有効磁場を用いて、面直磁化させた Ta/CoFeB 系において、Ta 層を傾斜膜にして面内方向の構造反転対称性を破ることにより、外部磁場フリーの磁化反転を達成した。この起源は未だ明らかにできていない部分が多いものの、応用上重要な知見を与えている結果であり、今後の詳細な研究による外部磁場フリーの磁化反

転の起源解明が期待される。

以上のような知見が本研究を通して得られた。これらの結果を踏まえた博士論文全体を通して得られた知見としては、エピタキシャル膜を作製することで、これまで金属系で観測が困難であった界面の効果を顕著に観測することが可能であり、また Ta/CoFeB 界面の効果を利用することで、デバイスの特性を改善、向上できるようなポジティブな結果が得られることが分かった。今後の更なる研究により、材料の結晶性がデバイス作製において制御可能なパラメータとなることを期待する。

## 研究業績

### A, 査読付ジャーナル掲載論文

- [1] **H. Gamou**, J. Ryu, M. Kohda, and J. Nitta,  
*Different spin relaxation mechanisms between epitaxial and polycrystalline Ta thin films*  
Appl. Phys. Express. **10**, 023003 (2017).
- [2] R.Enoki, **H. Gamou**, M. Kohda, and J. Nitta,  
*Enhancement of spin-orbit interaction of Cu thin films by oxidation treatment*,  
Appl. Phys. Express. **11**, 033001 (2018).
- [3] **H. Gamou**, Y. Du, M. Kohda, and J. Nitta,  
*Enhancement of spin current generation in epitaxial  $\alpha$ -Ta/CoFeB bilayer*,  
Phys. Rev. B **99**, 184408 (2019).
- [4] T. Sato, T.Seki, M. Kohda, J. Ryu, **H. Gamou**, S. Karube, K. Takanashi, and J. Nitta,  
*Evaluation of spin-orbit torque in a  $L1_0$ -FePt single layer and a  $L1_0$ -FePt/Pt bilayer*,  
Jpn. J. Appl. Phys. **58**, 060915R (2019).
- [5] **H. Gamou**, K. Shimose, R. Enoki, E. Minamitani, A. Shiotari, Y. Kotani, K. Toyoki, T. Nakamura,  
Y. Sugimoto, M. Kohda, J. Nitta and S. Miwa  
*Detection of spin-transfer from metal to molecule by magnetoresistance measurement*  
Nano. Lett. **20**, 75-80 (2020).

## B, 国際学会発表

[1] **H. Gamou**, J. Ryu, M. Kohda, and J. Nitta,

*Distinct Spin Relaxation mechanism in  $\alpha$ -Ta and  $\beta$ -Ta Thin Films*

The 9<sup>th</sup> International Conference on Physics and Applications of Spin-Related Phenomena in Solids (PASPS9), 2016. 8.10, Kobe, Japan. (Poster presentation)

[2] **H. Gamou**, M. Kohda, and J. Nitta,

*Comparison of current induced effective fields in Ta/CoFeB/MgO hetero-structure between epitaxial and amorphous Ta underlayers*

Spintech 9, 2017, 6, 7, Hakata, Japan. (Poster presentation)

[3] **H. Gamou**, Y. Du, M. Kohda, and J. Nitta,

*Enhancement of spin Hall angle in epitaxial  $\alpha$ -Ta/CoFeB bilayer*

The 10<sup>th</sup> International Conference on Physics and Applications of Spin-Related Phenomena in Solids (PASPS10), 2018. 8.16, Linz, Austria. (Poster presentation)

## C, 国内学会発表

[1] **H. Gamou**, J. Ryu, R. Ohsugi, M. Kohda and J. Nitta,

*Spin orbit interaction depending on crystal structures of Ta thin films*

62th JSAP spring conference, 2015. 3.12, Kanagawa, Japan. (Oral presentation)

**(“Outstanding English presentation award” was awarded)**

[2] **H. Gamou**, J. Ryu, S. Takasuna, K. Yoshizumi, M. Kohda, and J. Nitta,

*Gate control of magneto-transport properties in Ta thin film*

76th JSAP autumn conference 2015. 9.15, Nagoya, Japan. (Oral presentation)

[3] **H. Gamou**, M. Kohda and J. Nitta,

*Current induced effective fields of Ta/CoFeB/MgO hetero structure depending on Ta crystal structure*

77th JSAP autumn conference 2016. 9.16, Niigata, Japan. (Oral presentation)

[4] **H. Gamou**, Y. Du, M. Kohda, and J. Nitta,

*Spin Hall magneto resistance in epitaxial Ta thin films*

65th JSAP spring conference, 2018. 03.12, Tokyo, Japan. (Oral presentation)

[5] **H. Gamou**, S. Nishimura, M. Kohda, and J. Nitta,  
*Field-free current induced perpendicular magnetization switching property in epitaxial Ta/CoFeB/MgO structure*  
80th JSAP autumn conference, 2019. 9.18, Hokkaido, Japan. (Poster presentation)

## D, シンポジウム

[1] **H. Gamou**, J. Ryu, R. Ohsugi, M. Kohda, and J. Nitta,  
*Spin Relaxation Mechanism in Ta Thin Films*  
PASPS-20 (Domestic) 2015.12. 3, Sendai, Japan. (Oral presentation)

[2] **H. Gamou**, J. Ryu, M. Kohda, and J. Nitta,  
*Observation of D'yakonov-Perel' Spin Relaxation Mechanism in Epitaxial Ta Thin Films*  
3<sup>rd</sup> Workshop of Core-to-Core Project Tohoku-York-Kaiserslautern New concepts for future spintronic devices, 2016. 6.22, Kaiserslautern, Germany. (Poster presentation)

[3] **H. Gamou**, M. Kohda, and J. Nitta,  
*Current induced effective magnetic field in Ta/CoFeB/MgO structure with epitaxial Ta under layer*  
14th RIEC International Workshop on Spintronics, 2016.11.18, Sendai, Japan. (Poster presentation)

[4] **H. Gamou**, Y. Du, M. Kohda, and J. Nitta,  
Enhancement of Spin Hall Angle in Epitaxial Ta Thin Films Measured by Spin Hall Magneto Resistance  
Designated National University World Leading Research Center for Spintronics kick-off Symposium  
2018. February. Sendai Japan

[5] **H. Gamou**, Y. Du, M. Kohda, and J. Nitta,  
Enhancement of spin Hall effect in epitaxial  $\alpha$ -Ta/CoFeB structure  
Designated National University World Leading Research Center for Spintronics 2<sup>nd</sup> Symposium  
2019. February. Sendai Japan

## 謝辞

本博士論文を執筆するにあたり、多くの方々にお世話になりましたので、この場を借りて感謝の意を表したいと思います。

はじめに、大変興味深い研究テーマを与えてくださり、私が考え付かないような視点を数多く提供してくださった新田淳作教授、好田誠准教授、輕部修太郎助教授に感謝いたします。まだまだ研究者として未熟ですが、今後更に力をつけて先生方を上回るような立派な研究者になりたいと思います。また、博士研究員の Ye Du 氏には、スピンホール磁気抵抗測定の手法をご指導いただき、本論文の執筆に大きな貢献をしてくださいました。感謝いたします。スピントロニクス国際共同大学院の皆様には大変お世話になりました。平山祥郎先生、松倉文礼先生をはじめとするプログラム委員の先生方、また事務職員の皆様には普段よりご支援いただき、多くの貴重な経験をさせていただいたことに感謝いたします。いつも私の事を気にかけてくださり、英語学習のみならず、人文科学的な分野の勉強や精神的な部分で大きなサポートをしてくださった Elizabeth Webeck 先生に感謝を申し上げます。

最後まで博士論文の研究を遂行できたのは先生方からのご支援だけではなく、研究室のメンバーが常に良い雰囲気を作ってくれたためであると考えています。まず私が学部4年生の頃から私の研究を指導してくださり、様々な知識を私に教えてくださった柳淀春氏に感謝を申し上げます。ここまでの研究をすることができたのも柳氏に指導をしていただけたからだと思います。同期の中川原圭太氏とは2人3脚で研究室の運営を行い、ベクトルは異なっていましたが同期として切磋琢磨できたことを嬉しく思います。進路は異なりますが、今後も頑張っていきましょう。学部生時代の同級生でありました、有賀悠太氏、今野克洸氏、ゴンミンシック氏は、卒業後もいつも私の研究を気にかけてくださりました。精神的な部分で多大なるサポートをしていただき、本当にありがとうございます。また竹田佳史氏も学部生時代の同期でありましたが、もう会う事ができないのが残念でなりません。あなたのような優秀な人材が苦痛を感じずに、人々から受け入れられて能力を発揮できる社会を作ることを強く誓います。後輩である飯笹大介氏、齋藤隆仁氏は、互いに異なる分野の研究を行っていましたが共に切磋琢磨し、研究のモチベーションを高めることができました。私と中川原氏が研究室を去った後は君たちが最高学年です。研究室内を広く俯瞰し、足りないところを補い、良いところを伸ばしていただけたらと思います。後輩である榎涼斗氏、鈴木将紀氏とは、短い間でしたが研究室内の実験や勉強はもちろん、研究室外のプライベートにおいても様々な経験を共にさせていただき、楽しい時間を過ごすことができました。公私ともに私に対して温かく接してくださり、本当にありがとうございます。その他にも、ここには書ききれませんが、研究室生活を通して私と接してくださった方々に感謝を申し上げます。

最後に、私をここまで育ててくださった家族に感謝を申し上げます。

